

F. Jörgiebel

1971

Züchtung und Untersuchungen von Silberchloridkristallen:

Ein Beitrag zur Entwicklung eines Präzipitations-Detektors

für Spuren ionisierender Teilchen

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades

der naturwissenschaftlichen Fakultät

der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität

zu Frankfurt am Main

vorgelegt von

Friedrich Zörgiebel

aus Fränkisch Crumbach

1971

Gedruckt mit Genehmigung der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität zu Frankfurt am Main

Dekan: Prof. Dr. H. Oelschläger



1. Berichterstatter: Prof. Dr. G. Haase

2. Berichterstatter: Prof. Dr. E. Schopper

Tag der mündlichen Prüfung: 4. Juni 1971

A. EINFÜHRUNG	1
B. BEWERTUNG DER VERSUCHSRESULTATE	2
I. Vorversuch	2
II. Hauptversuch	3
1. Bestimmung des Siedepunktes	3
2. Bestimmung des Schmelzpunktes	4
3. Bestimmung des Brechungsindex	5
4. Bestimmung des Dichtes	6
5. Bestimmung des Molekulargewichtes	7
6. Bestimmung des Kristallinums	8
7. Bestimmung des Zersetzungspunktes	9
C. BESCHREIBUNG DER VERSUCHSANORDNUNG	10
I. Versuchsaufbau	10
II. Versuchsdurchführung	11
a) Bestimmung des Siedepunktes	11
b) Bestimmung des Schmelzpunktes	12
c) Bestimmung des Brechungsindex	13
d) Bestimmung des Dichtes	14
e) Bestimmung des Molekulargewichtes	15
f) Bestimmung des Kristallinums	16
g) Bestimmung des Zersetzungspunktes	17
III. Versuchsergebnisse	18
1. Siedepunkt	18
2. Schmelzpunkt	19
3. Brechungsindex	20
4. Dichte	21
5. Molekulargewicht	22
6. Kristallinums	23
7. Zersetzungspunkt	24
8. Zusammenfassung	25
9. Diskussion	26
10. Literaturverzeichnis	27
11. Anlagen	28
12. Tabellen	29
13. Zeichnungen	30
14. Sonstiges	31
15. Zusammenfassung	32
16. Diskussion	33
17. Literaturverzeichnis	34
18. Anlagen	35
19. Tabellen	36
20. Zeichnungen	37
21. Sonstiges	38
22. Zusammenfassung	39
23. Diskussion	40
24. Literaturverzeichnis	41
25. Anlagen	42
26. Tabellen	43
27. Zeichnungen	44
28. Sonstiges	45
29. Zusammenfassung	46
30. Diskussion	47
31. Literaturverzeichnis	48
32. Anlagen	49
33. Tabellen	50
34. Zeichnungen	51
35. Sonstiges	52
36. Zusammenfassung	53
37. Diskussion	54
38. Literaturverzeichnis	55
39. Anlagen	56
40. Tabellen	57
41. Zeichnungen	58
42. Sonstiges	59
43. Zusammenfassung	60
44. Diskussion	61
45. Literaturverzeichnis	62
46. Anlagen	63
47. Tabellen	64
48. Zeichnungen	65
49. Sonstiges	66
50. Zusammenfassung	67
51. Diskussion	68
52. Literaturverzeichnis	69
53. Anlagen	70
54. Tabellen	71
55. Zeichnungen	72
56. Sonstiges	73
57. Zusammenfassung	74
58. Diskussion	75
59. Literaturverzeichnis	76
60. Anlagen	77
61. Tabellen	78
62. Zeichnungen	79
63. Sonstiges	80
64. Zusammenfassung	81
65. Diskussion	82
66. Literaturverzeichnis	83
67. Anlagen	84
68. Tabellen	85
69. Zeichnungen	86
70. Sonstiges	87
71. Zusammenfassung	88
72. Diskussion	89
73. Literaturverzeichnis	90
74. Anlagen	91
75. Tabellen	92
76. Zeichnungen	93
77. Sonstiges	94
78. Zusammenfassung	95
79. Diskussion	96
80. Literaturverzeichnis	97
81. Anlagen	98
82. Tabellen	99
83. Zeichnungen	100
84. Sonstiges	101
85. Zusammenfassung	102
86. Diskussion	103
87. Literaturverzeichnis	104
88. Anlagen	105
89. Tabellen	106
90. Zeichnungen	107
91. Sonstiges	108
92. Zusammenfassung	109
93. Diskussion	110
94. Literaturverzeichnis	111
95. Anlagen	112
96. Tabellen	113
97. Zeichnungen	114
98. Sonstiges	115
99. Zusammenfassung	116
100. Diskussion	117
101. Literaturverzeichnis	118
102. Anlagen	119
103. Tabellen	120
104. Zeichnungen	121
105. Sonstiges	122
106. Zusammenfassung	123
107. Diskussion	124
108. Literaturverzeichnis	125
109. Anlagen	126
110. Tabellen	127
111. Zeichnungen	128
112. Sonstiges	129
113. Zusammenfassung	130
114. Diskussion	131
115. Literaturverzeichnis	132
116. Anlagen	133
117. Tabellen	134
118. Zeichnungen	135
119. Sonstiges	136
120. Zusammenfassung	137
121. Diskussion	138
122. Literaturverzeichnis	139
123. Anlagen	140
124. Tabellen	141
125. Zeichnungen	142
126. Sonstiges	143
127. Zusammenfassung	144
128. Diskussion	145
129. Literaturverzeichnis	146
130. Anlagen	147
131. Tabellen	148
132. Zeichnungen	149
133. Sonstiges	150
134. Zusammenfassung	151
135. Diskussion	152
136. Literaturverzeichnis	153
137. Anlagen	154
138. Tabellen	155
139. Zeichnungen	156
140. Sonstiges	157
141. Zusammenfassung	158
142. Diskussion	159
143. Literaturverzeichnis	160
144. Anlagen	161
145. Tabellen	162
146. Zeichnungen	163
147. Sonstiges	164
148. Zusammenfassung	165
149. Diskussion	166
150. Literaturverzeichnis	167
151. Anlagen	168
152. Tabellen	169
153. Zeichnungen	170
154. Sonstiges	171
155. Zusammenfassung	172
156. Diskussion	173
157. Literaturverzeichnis	174
158. Anlagen	175
159. Tabellen	176
160. Zeichnungen	177
161. Sonstiges	178
162. Zusammenfassung	179
163. Diskussion	180
164. Literaturverzeichnis	181
165. Anlagen	182
166. Tabellen	183
167. Zeichnungen	184
168. Sonstiges	185
169. Zusammenfassung	186
170. Diskussion	187
171. Literaturverzeichnis	188
172. Anlagen	189
173. Tabellen	190
174. Zeichnungen	191
175. Sonstiges	192
176. Zusammenfassung	193
177. Diskussion	194
178. Literaturverzeichnis	195
179. Anlagen	196
180. Tabellen	197
181. Zeichnungen	198
182. Sonstiges	199
183. Zusammenfassung	200
184. Diskussion	201
185. Literaturverzeichnis	202
186. Anlagen	203
187. Tabellen	204
188. Zeichnungen	205
189. Sonstiges	206
190. Zusammenfassung	207
191. Diskussion	208
192. Literaturverzeichnis	209
193. Anlagen	210
194. Tabellen	211
195. Zeichnungen	212
196. Sonstiges	213
197. Zusammenfassung	214
198. Diskussion	215
199. Literaturverzeichnis	216
200. Anlagen	217
201. Tabellen	218
202. Zeichnungen	219
203. Sonstiges	220
204. Zusammenfassung	221
205. Diskussion	222
206. Literaturverzeichnis	223
207. Anlagen	224
208. Tabellen	225
209. Zeichnungen	226
210. Sonstiges	227
211. Zusammenfassung	228
212. Diskussion	229
213. Literaturverzeichnis	230
214. Anlagen	231
215. Tabellen	232
216. Zeichnungen	233
217. Sonstiges	234
218. Zusammenfassung	235
219. Diskussion	236
220. Literaturverzeichnis	237
221. Anlagen	238
222. Tabellen	239
223. Zeichnungen	240
224. Sonstiges	241
225. Zusammenfassung	242
226. Diskussion	243
227. Literaturverzeichnis	244
228. Anlagen	245
229. Tabellen	246
230. Zeichnungen	247
231. Sonstiges	248
232. Zusammenfassung	249
233. Diskussion	250
234. Literaturverzeichnis	251
235. Anlagen	252
236. Tabellen	253
237. Zeichnungen	254
238. Sonstiges	255
239. Zusammenfassung	256
240. Diskussion	257
241. Literaturverzeichnis	258
242. Anlagen	259
243. Tabellen	260
244. Zeichnungen	261
245. Sonstiges	262
246. Zusammenfassung	263
247. Diskussion	264
248. Literaturverzeichnis	265
249. Anlagen	266
250. Tabellen	267
251. Zeichnungen	268
252. Sonstiges	269
253. Zusammenfassung	270
254. Diskussion	271
255. Literaturverzeichnis	272
256. Anlagen	273
257. Tabellen	274
258. Zeichnungen	275
259. Sonstiges	276
260. Zusammenfassung	277
261. Diskussion	278
262. Literaturverzeichnis	279
263. Anlagen	280
264. Tabellen	281
265. Zeichnungen	282
266. Sonstiges	283
267. Zusammenfassung	284
268. Diskussion	285
269. Literaturverzeichnis	286
270. Anlagen	287
271. Tabellen	288
272. Zeichnungen	289
273. Sonstiges	290
274. Zusammenfassung	291
275. Diskussion	292
276. Literaturverzeichnis	293
277. Anlagen	294
278. Tabellen	295
279. Zeichnungen	296
280. Sonstiges	297
281. Zusammenfassung	298
282. Diskussion	299
283. Literaturverzeichnis	300
284. Anlagen	301
285. Tabellen	302
286. Zeichnungen	303
287. Sonstiges	304
288. Zusammenfassung	305
289. Diskussion	306
290. Literaturverzeichnis	307
291. Anlagen	308
292. Tabellen	309
293. Zeichnungen	310
294. Sonstiges	311
295. Zusammenfassung	312
296. Diskussion	313
297. Literaturverzeichnis	314
298. Anlagen	315
299. Tabellen	316
300. Zeichnungen	317
301. Sonstiges	318
302. Zusammenfassung	319
303. Diskussion	320
304. Literaturverzeichnis	321
305. Anlagen	322
306. Tabellen	323
307. Zeichnungen	324
308. Sonstiges	325
309. Zusammenfassung	326
310. Diskussion	327
311. Literaturverzeichnis	328
312. Anlagen	329
313. Tabellen	330
314. Zeichnungen	331
315. Sonstiges	332
316. Zusammenfassung	333
317. Diskussion	334
318. Literaturverzeichnis	335
319. Anlagen	336
320. Tabellen	337
321. Zeichnungen	338
322. Sonstiges	339
323. Zusammenfassung	340
324. Diskussion	341
325. Literaturverzeichnis	342
326. Anlagen	343
327. Tabellen	344
328. Zeichnungen	345
329. Sonstiges	346
330. Zusammenfassung	347
331. Diskussion	348
332. Literaturverzeichnis	349
333. Anlagen	350
334. Tabellen	351
335. Zeichnungen	352
336. Sonstiges	353
337. Zusammenfassung	354
338. Diskussion	355
339. Literaturverzeichnis	356
340. Anlagen	357
341. Tabellen	358
342. Zeichnungen	359
343. Sonstiges	360
344. Zusammenfassung	361
345. Diskussion	362
346. Literaturverzeichnis	363
347. Anlagen	364
348. Tabellen	365
349. Zeichnungen	366
350. Sonstiges	367
351. Zusammenfassung	368
352. Diskussion	369
353. Literaturverzeichnis	370
354. Anlagen	371
355. Tabellen	372
356. Zeichnungen	373
357. Sonstiges	374
358. Zusammenfassung	375
359. Diskussion	376
360. Literaturverzeichnis	377
361. Anlagen	378
362. Tabellen	379
363. Zeichnungen	380
364. Sonstiges	381
365. Zusammenfassung	382
366. Diskussion	383
367. Literaturverzeichnis	384
368. Anlagen	385
369. Tabellen	386
370. Zeichnungen	387
371. Sonstiges	388
372. Zusammenfassung	389
373. Diskussion	390
374. Literaturverzeichnis	391
375. Anlagen	392
376. Tabellen	393
377. Zeichnungen	394
378. Sonstiges	395
379. Zusammenfassung	396
380. Diskussion	397
381. Literaturverzeichnis	398
382. Anlagen	399
383. Tabellen	400
384. Zeichnungen	401
385. Sonstiges	402
386. Zusammenfassung	403
387. Diskussion	404
388. Literaturverzeichnis	405
389. Anlagen	406
390. Tabellen	407
391. Zeichnungen	408
392. Sonstiges	409
393. Zusammenfassung	410
394. Diskussion	411
395. Literaturverzeichnis	412
396. Anlagen	413

INHALTSÜBERSICHT

	Seite
A. EINLEITUNG	1
B. ZÜCHTUNG DER AgCl-KRISTALLE	2
I. Überblick	2
II. Zonenreinigung	3
III. Bridgman-Stockbarger-Verfahren	4
IV. Modifiziertes Mitchell-Verfahren zur Serien- züchtung	6
1. Erschmelzen der Polykristalle	7
2. Züchten der Einkristalle	7
3. Das fertige AgCl-Kristallplättchen	10
C. EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN AgCl-KRISTALLEN . . .	13
I. Ritzhärtemessungen	13
1. Ritzhärte-Anisotropie von AgCl-Einkristallen	14
a) Durchführung der Messungen	14
b) Ergebnisse und Diskussion	14
2. Ritzhärte von AgCl:Cd-Kristallen	19
a) Durchführung der Messungen	19
b) Ergebnisse und Diskussion	19
II. Optische Absorptionsmessungen an AgCl:Cd- Kristallen	23
1. Durchführung der Messungen	23
2. Ergebnisse und Diskussion	24
III. Elektronenmikroskopische Untersuchungen	28
1. Elektronenbeschuß von kristallinen CdCl ₂ - Fällungen	28
2. Beobachtungen an AgCl:Cd-Ultramikrotom- schnitten	32
a) Herstellung der Kristallpräparate	32
b) Ergebnisse und Diskussion	33

D. AgCl-KRISTALLE ALS TEILCHENSPURDETEKTOREN 41

I. Prüfung dotierter AgCl-Kristalle auf Detektor-
eignung

1. Strahlenquellen und Dekorationsverfahren . . . 41
2. Ergebnisse bei Cd-dotierten AgCl-Kristallen . 42
3. Ergebnisse bei mit Cd+Pb(+Au+Cu) dotierten
AgCl-Kristallen 44
4. Ergebnisse bei Mn-dotierten AgCl-Kristallen . 45
5. Ergebnisse bei mit weiteren Elementen dotier-
ten AgCl-Kristallen 45
 - a) Dotierung mit Li, Na, K, Rb, Cs 46
 - b) " " Be, Mg, Ca, Sr, Ba 46
 - c) " " Al, In, Ce, Dy 46
 - d) " " Cu, Zn, Hg, Ge, Sn, Sb 47
 - e) " " Ti, V, Cr 47
 - f) " " Fe, Co, Ni, Pd 47

II. Die Deltastrahlen-Theorie angewandt auf
AgCl-Detektoren 48

1. Teilchen-Energieverlust durch Ionisation
der Bremsmaterie 48
2. Materialdaten des AgCl-Kristalls 50
3. Ionisationsenergie des AgCl 51
4. Energieverlust von Elektronen in AgCl-
Kristallen 53
5. Deltastrahlen-Energiespektrum in AgCl-
Kristallen 58
6. Energieverlust der Deltastrahlengesamtheit
in AgCl-Kristallen 62

III. Vergleich dekoriierter Spuren mit den Ergebnissen
der Deltastrahlentheorie. 67

1. Zusammenstellung einiger ausgewählter Spuren-
bilder 67
2. Vergleich mit der Deltastrahlentheorie 72

	Seite
IV. Vorstellungen zur Spurentstehung im AgCl:Cd-Detektor	75
1. Fehlordnung im Cd-dotierten AgCl-Kristallgitter	75
2. Überlegungen zum Primärprozeß	78
3. Ag-Keime im Core	80
a) Core-Zentrum	80
b) Äußerer Core-Bereich	82
4. Ag-Keime außerhalb des Cores	82
5. Dekorationsmechanismus	84
ZUSAMMENFASSUNG	85
LITERATUR	88

A. EINLEITUNG

Zur Erzeugung von sichtbaren Spuren ionisierender Teilchen werden in der Kern- und Elementarteilchenphysik seit vielen Jahren Nebel- und Blasenkammern verwendet. Da die photographische Schicht auch für schwere ionisierende Partikel sensibilisiert werden kann, wurden schon frühzeitig - insbesondere für die Erforschung der kosmischen Strahlung - spezielle Kernspuremulsionen eingesetzt (1). Seit Mitte der sechziger Jahre kamen mehr und mehr auch Dielektrika (Glimmer, Cellulose-Nitrat, verschiedene Plastiks, Gläser usw.) als Detektoren in Gebrauch, bei denen die Teilchen-Spuren nach dem Beschuß durch Ätzen in Form von Grübchen oder Schläuchen in der Materie sichtbar gemacht werden (z.B. 2, 3, 4).

Zur gleichen Zeit erhielten Childs und Slifkin (5, 6) und danach auch andere Autoren (7, 8) mit einer speziellen Dekorationsmethode nach Haynes und Shokley (9) erstmals in Silberchloridkristallen sichtbare Spuren in Form von Schwärzungen ähnlich denen in Kernspuremulsionen. Da reinste AgCl-Kristalle unempfindlich gegen Teilchenbeschuß sind, versuchten Childs und Slifkin (10) durch Analyse von als Detektor brauchbaren und unbrauchbaren Kristallen herauszufinden, welche Fremdsubstanz die Teilchenspurbildung begünstigt.

Da dieses Verfahren wenig Erfolg zeigte - es gelang nicht, reproduzierbare AgCl-Detektoren zu bekommen - , gingen wir nach einigen Vorüberlegungen von Haase und Schopper (11, 12) und nach wenig erfolgreichen Experimenten mit kommerziell erhältlichen AgCl-Kristallen dazu über, durch Einführung eines neuen Kristallzuchtverfahrens systematisch eine Vielzahl von Dotierungen in AgCl im Hinblick auf Spurenbildung zu erforschen. Nach ersten Erfolgen (13) konnten wir detailliertere Ergebnisse der Spurenbildung in AgCl gewinnen, über die wir zum Teil berichteten (14, 15, 16, 17, 18).

Unter teilweiser Heranziehung der gemeinsamen Ergebnisse der Frankfurter Forschungsgruppe steht in der vorliegenden Arbeit vor allem der festkörperphysikalische Aspekt der von uns entwickelten AgCl-Detektoren im Vordergrund.

B. ZÜCHTUNG DER AgCl-KRISTALLE

I. Überblick

Kristalle der Silberhalogenide lassen sich nach verschiedenen Verfahren herstellen:

Nach der alten klassischen Methode der Fällung in übersättigter Lösung - hauptsächlich in der Photoemulsions-Technik üblich - erhält man Kriställchen bis zu einigen μm Größe. Für Kristalle von cm-Dimensionen wird man die Züchtung aus der Schmelze bevorzugen. Dazu bieten sich hauptsächlich das Ziehverfahren nach Kyropoulos-Czochralski (19, 20) und das Gradientenverfahren nach Bridgman-Stockbarger (21, 22) an. Nail u.a. (23) berichteten erstmals über eine Bridgman-Apparatur zur Silberhalogenid-Herstellung. Ein Gradientenverfahren besonderer Art ist eine von Clark und Mitchell (24) entwickelte Methode zur Züchtung dünner Plättchen: Ein Tropfen AgBr-Schmelze wird zwischen zwei durch Pt-Abstandsfäden getrennte Glasplättchen gebracht. Dieses "Sandwich" wird langsam von einer "heißen" auf eine "kalte" Metallplatte geschoben, wobei sich eine einkristalline AgBr-Schicht ausbildet. Eine gute Zusammenstellung der angeführten Silberhalogenid-Züchtmethoden findet man bei Berry u.a. (25). Das in der Metallphysik verbreitete Rekristallisationsverfahren, d.h. Züchten eines Einkristalls aus der festen Phase durch Walz- und Temperprozesse, läßt sich nach Burgers u.a. (26, 27) auch auf AgCl anwenden.

Wir haben zur Züchtung der AgCl-Kristalle (Kristalltyp: NaCl, Schmelzpunkt: 455°C) im Hinblick auf die Detektorentwicklung je eine Anlage nach dem Kyropoulos- und dem Bridgman-Verfahren erstellt. Wegen des etwas komplizierteren Verfahrens und der großen Verschmutzungsgefahr wurde die Kyropoulos-Züchtung nicht weiter verfolgt, obwohl wir gute Einkristalle erhielten. Das Bridgman-Züchtverfahren wenden wir meist nur dann an, wenn große undotierte Kristalle (bis etwa 100 g) von hoher Qualität benötigt werden. Unsere

Anlage wird in Abschnitt III kurz beschrieben. Von ausschlaggebender Bedeutung für die Erfolge in der Detektorentwicklung ist das in Anlehnung an die Mitchell-Methode von uns entwickelte Verfahren zur Serienzüchtung dünner Plättchen, über das in Abschnitt IV näher berichtet wird. Versuche zur Züchtung von AgCl-Kristallen durch Rekristallisation zeigten erste Erfolge, sind aber noch im Gange; auf eine Darstellung wird hier verzichtet.

II. Zonenreinigung

Als Ausgangsmaterial für die Kristallzüchtung verwendeten wir AgCl-Pulver mit einem Reinheitsgrad von 99,999 % der Firmen Johnson Matthey & Co. Ltd., London, Koch-Light Laboratories Ltd., Colnbrook (England) und HEK-GmbH., Lübeck. Bei Dotierungen unterhalb etwa 0,1 % unterwarfen wir dieses Material stets einer Nachreinigung durch Zonenschmelzen. Die in unserem Institut gebaute Anlage (Abb. 1) besteht aus 5 Zonenöfchen (Z), die sich über ein abgeschlossenes Quarzglasrohr (R) bewegen, in dem sich der eigentliche Behälter (wiederum ein einseitig offenes Quarzglasrohr) mit dem 100 g schweren AgCl-Barren befindet. Stromversorgung, Regelung und Antrieb entsprechen in etwa der unter B.IV. beschriebenen Anlage.

Nach vielen Vorversuchen haben wir ein mit mehreren Zonenläufen arbeitendes Verfahren entwickelt, mit dem bei optimaler Materialausnutzung ein annehmbarer Reinigungseffekt erzielt wird. So werden z.B. nach etwa 40 Zonendurchgängen die "schmutzigen" Endstücke eines Barrens entfernt, das "saubere" Mittelstück wird erneut aufgeschmolzen und einem weiteren Zonen-Reinigungsgang unterworfen usw. Die "schmutzigen" Endstücke der verschiedenen Reinigungsstufen werden in dem Schema z.T. weiter aufbereitet, z.T. verworfen. Das Mittelstück des letzten Reinigungsganges wird durch totales Aufschmelzen homogenisiert und dann mit Hilfe einer Quarzglasschere oder durch Eintropfen in über Quarz nachdestilliertes Zonenaustauscher-Wasser in handliche Stückchen (ca. 0,2 g) zerkleinert.

Details über die Zonenreinigungsvorgänge und über die verwendete Apparatur wurden von Fritsch (28) und insbesondere von Schäfer (29) behandelt. In diesen Arbeiten und bei Polzin (30) werden auch die äußerst wichtigen Reinigungsprozeduren der beim Zonenreinigen und Kristallzüchten benutzten Geräte beschrieben. Ferner wird dort näher über die Evakuierung und Gasbeschickung der Kristallherstellungsgarapparaturen berichtet.

III. Bridgman-Stockbarger-Verfahren

Zur Züchtung großer AgCl-Kristalle wurde eine Bridgman-Anlage gebaut, deren wichtigste Besonderheiten in Abb. 2 festgehalten sind. Stromversorgung, Temperaturregelung und Antrieb entsprechen der zeitlich vorher entwickelten Anlage unter B.IV. Kernstück der Anlage ist ein Ofen mit einem senkrecht angeordneten Keramik-Gewinderohr von 50 cm Länge und von 3,5 cm Innendurchmesser. Das Rohr trägt eine einzige Heizwicklung, die innerhalb der oberen 20 cm eine Windungshöhe von 5 mm (Warmzone) und in den anschließenden 5 cm Rohrstrecke eine Windungshöhe von 2,5 mm (Hochtemperaturzone) besitzt. Die untere Ofenhälfte bleibt unbeheizt. Auf diese Weise wird die Steilheit des Temperaturgradienten am Erstarrungspunkt begünstigt. Durch Umschalter ist die Ofentemperatur wahlweise über die eine oder die andere Zone mittels Thermoelemente meß- und regelbar.

Ein Quarzglasrohr mit ausgezogener Keimspitze wird mit AgCl-Material gefüllt, dem man im Bedarfsfalle Dotierungs-Chloride beigibt. Bei höheren Dotierungsgraden kann man die Substanzen auch als Elemente (Metallpulver) einwiegen. Nach anschließender Evakuierung und Beschickung mit Chlor, das als Schutzgas bzw. als Reaktionsgas zur Chlorierung der Dotierungselemente dient, wird die Ampulle abgeschmolzen und mit einem Quarz-Haken versehen. Sie wird nunmehr langsam in den Ofen abgesenkt. Günstige Züchtparameter waren z.B. 40 V, 3,5/3,0 A bei einer Senkgeschwindigkeit von 0,1 cm/h. Auf diese Weise

Anlage wird in Abschnitt III kurz beschrieben. Von ausschlaggebender Bedeutung für die Erfolge in der Detektorentwicklung ist das in Anlehnung an die Mitchell-Methode von uns entwickelte Verfahren zur Serienzüchtung dünner Plättchen, über das in Abschnitt IV näher berichtet wird. Versuche zur Züchtung von AgCl-Kristallen durch Rekrystallisation zeigten erste Erfolge, sind aber noch im Gange; auf eine Darstellung wird hier verzichtet.

II. Zonenreinigung

Als Ausgangsmaterial für die Kristallzüchtung verwendeten wir AgCl-Pulver mit einem Reinheitsgrad von 99,999 % der Firmen Johnson Matthey & Co. Ltd., London, Koch-Light Laboratories Ltd., Colnbrook (England) und HEK-GmbH., Lübeck. Bei Dotierungen unterhalb etwa 0,1 % unterwarfen wir dieses Material stets einer Nachreinigung durch Zonenschmelzen. Die in unserem Institut gebaute Anlage (Abb. 1) besteht aus 5 Zonenöfchen (Z), die sich über ein abgeschlossenes Quarzglasrohr (R) bewegen, in dem sich der eigentliche Behälter (wiederum ein einseitig offenes Quarzglasrohr) mit dem 100 g schweren AgCl-Barren befindet. Stromversorgung, Regelung und Antrieb entsprechen in etwa der unter B.IV. beschriebenen Anlage.

Nach vielen Vorversuchen haben wir ein mit mehreren Zonenläufen arbeitendes Verfahren entwickelt, mit dem bei optimaler Materialausnutzung ein annehmbarer Reinigungseffekt erzielt wird. So werden z.B. nach etwa 40 Zonendurchgängen die "schmutzigen" Endstücke eines Barrens entfernt, das "saubere" Mittelstück wird erneut aufgeschmolzen und einem weiteren Zonen-Reinigungsgang unterworfen usw. Die "schmutzigen" Endstücke der verschiedenen Reinigungsstufen werden in dem Schema z.T. weiter aufbereitet, z.T. verworfen. Das Mittelstück des letzten Reinigungsganges wird durch totales Aufschmelzen homogenisiert und dann mit Hilfe einer Quarzglasschere oder durch Eintropfen in über Quarz nachdestilliertes Zonenaustauscher-Wasser in handliche Stückchen (ca. 0,2 g) zerkleinert.

Details über die Zonenreinigungsvorgänge und über die verwendete Apparatur wurden von Fritsch (28) und insbesondere von Schäfer (29) behandelt. In diesen Arbeiten und bei Polzin (30) werden auch die äußerst wichtigen Reinigungsprozeduren der beim Zonenreinigen und Kristallzüchten benutzten Geräte beschrieben. Ferner wird dort näher über die Evakuierung und Gasbeschickung der Kristallherstellungsgaräte berichtet.

III. Bridgman-Stockbarger-Verfahren

Zur Züchtung großer AgCl-Kristalle wurde eine Bridgman-Anlage gebaut, deren wichtigste Besonderheiten in Abb. 2 festgehalten sind. Stromversorgung, Temperaturregelung und Antrieb entsprechen der zeitlich vorher entwickelten Anlage unter B.IV. Kernstück der Anlage ist ein Ofen mit einem senkrecht angeordneten Keramik-Gewinderohr von 50 cm Länge und von 3,5 cm Innendurchmesser. Das Rohr trägt eine einzige Heizwicklung, die innerhalb der oberen 20 cm eine Windungshöhe von 5 mm (Warmzone) und in den anschließenden 5 cm Rohrstrecke eine Windungshöhe von 2,5 mm (Hochtemperaturzone) besitzt. Die untere Ofenhälfte bleibt unbeheizt. Auf diese Weise wird die Steilheit des Temperaturgradienten am Erstarrungspunkt begünstigt. Durch Umschalter ist die Ofentemperatur wahlweise über die eine oder die andere Zone mittels Thermoelemente meß- und regelbar.

Ein Quarzglasrohr mit ausgezogener Keimspitze wird mit AgCl-Material gefüllt, dem man im Bedarfsfalle Dotierungs-Chloride beigibt. Bei höheren Dotierungsgraden kann man die Substanzen auch als Elemente (Metallpulver) einwiegen. Nach anschließender Evakuierung und Beschickung mit Chlor, das als Schutzgas bzw. als Reaktionsgas zur Chlorierung der Dotierungselemente dient, wird die Ampulle abgeschmolzen und mit einem Quarz-Haken versehen. Sie wird nunmehr langsam in den Ofen abgesenkt. Günstige Züchtparameter waren z.B. 40 V, 3,5/3,0 A bei einer Senkgeschwindigkeit von 0,1 cm/h. Auf diese Weise

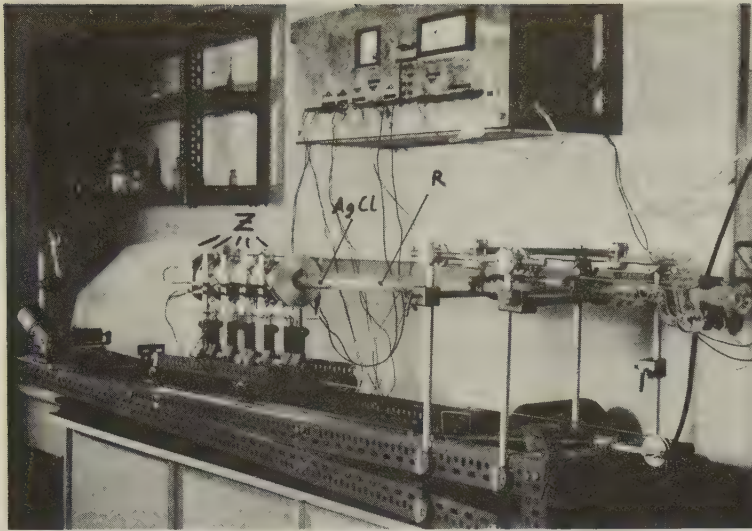


Abb. 1.

Zonenreinigungsanlage
Z = Zonenöfchen
R = Quarzglasrohr

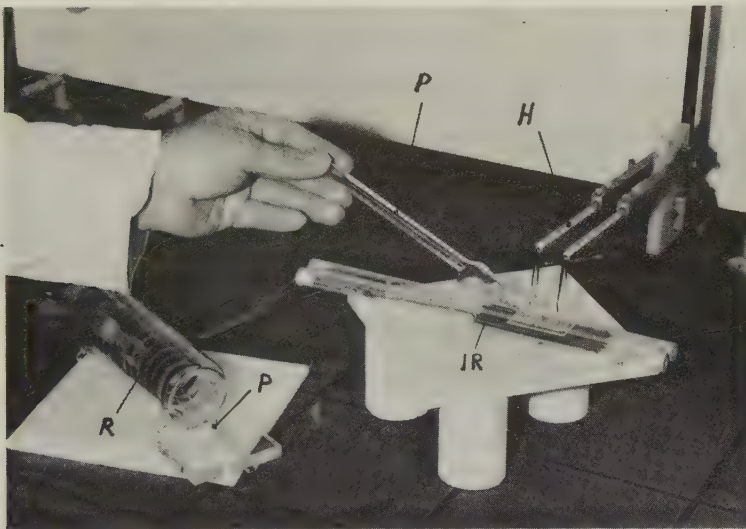


Abb. 4.

Erschmelzen der
Polykristalle
IR = Infrarotheizer
H = Quarzhalter
P = Pipette
R = Quarzrohröfchen

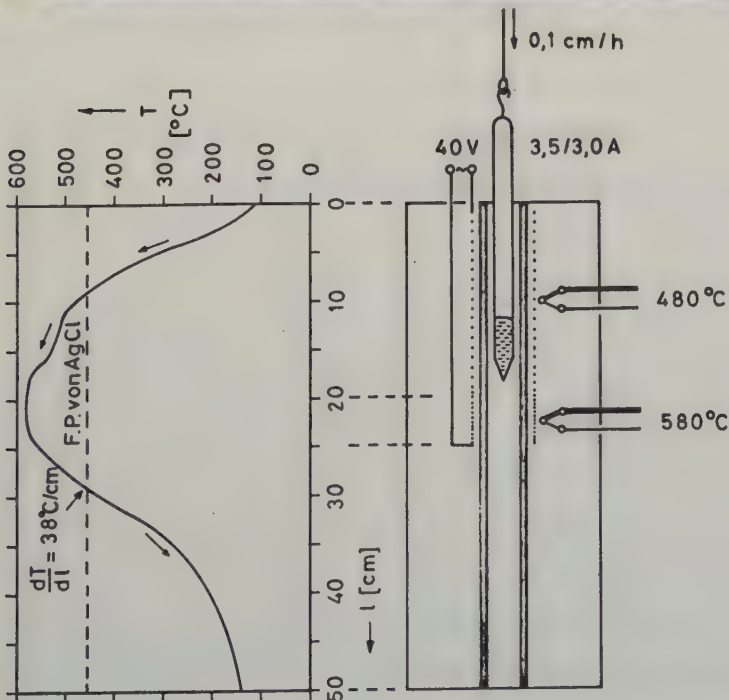


Abb. 2. Bridgman-Kristallzüchtofen
mit Temperaturprofil

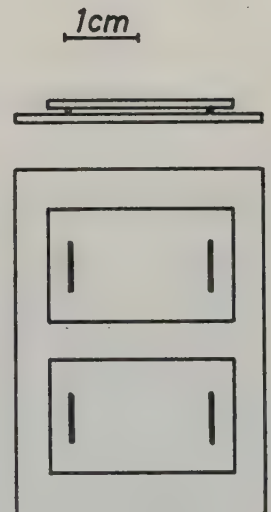


Abb. 3.

Quarzglas-
Doppelsandwich

erhält man sehr gute Einkristallzylinder bis etwa 100 g. Bei Zusätzen mit hohem Verteilungsgradienten - z.B. $k \approx 2$ bei Cd (31) - zeigt der Kristall allerdings einen erheblichen Konzentrationsunterschied der Dotierung über die Kristalllänge, bei Cd-Zusatz leicht erkennbar an der starken Trübung an der unteren Ampullenspitze gegenüber dem oberen Kristallende. Die Homogenisierung ließe sich nur durch eine lange Diffusionstemperung direkt unter dem Schmelzpunkt durchführen, was einige Schwierigkeiten bereitet. Wir haben daher bei dotierten Kristallen nur in Spezialfällen das Bridgman-Verfahren angewandt.

IV. Modifiziertes Mitchell-Verfahren zur Serienzüchtung

Die Hauptnachteile von Kyropoulos- und Bridgman-Verfahren waren für unsere Belange:

- a) Die Züchtgeschwindigkeit ist sehr niedrig (etwa 1 mm/h).
- b) Pro Charge kann nur eine Dotierungskonzentration verwendet werden; wollte man aufgrund der vorhandenen Konzentrationsverteilung eine bestimmte Konzentration auswählen, so hieße das: Trennen in Scheiben und diese analysieren.
- c) Die Kristalle sind unnötig groß und müssen zersägt werden.
- d) Anschließende Homogenisierung ist erforderlich.

Zusammengefaßt: Die Verfahren waren für unsere Zwecke - nämlich die Produktion von kleinen Kristallen mit sehr vielen Dotierungsstoffen und -konzentrationen in kurzer Zeit - zu umständlich, zu langsam und zu kostspielig. In Abwandlung des schon früher erwähnten Verfahrens von Clark und Mitchell (24) haben wir daher eine Apparatur entwickelt, die die genannten Nachteile der üblichen Methoden nicht besitzt. Gegenüber der Mitchell-Apparatur haben wir als entscheidende Verbesserungen: Möglichkeit der Serienzüchtung,

Erschütterungsfreiheit der Kristalle während der Züchtung, leichte Anwendung eines Schutzgases. Über unser Verfahren haben wir mittlerweile detailliert berichtet (32, 33, 34). Die Einzelheiten seien hier wegen ihrer Wichtigkeit noch einmal zusammengefaßt.

1. Erschmelzen der Polykristalle

Die AgCl-Schichten werden in einem Doppel-"Sandwich" aus Quarzglas nach Abb. 3 gezüchtet. Man erkennt Grundplatte, 4 Abstandsfäden (ca. 0,2 mm Ø) und 2 Deckplättchen. Die von anderen Autoren (24, 25) verwendeten Platin-Abstandsfäden fanden wir ungeeignet, da nach unseren ersten Versuchen eine teilweise Auflösung des Pt im flüssigen AgCl zu beobachten war. - Die Kombination wird gemäß Abb. 4 auf einem Infrarot-heizer (IR) über den Schmelzpunkt erhitzt (H = Quarzhalter). In einer Pipette (P) wird 1,2 g AgCl-Pulver eingewogen, mit der gewünschten Substanz meist in wäßriger Lösung dotiert und nach einer Vortrocknung in einem Quarzrohrföhen (R) aufgeschmolzen. Der flüssige AgCl-Tropfen wird zwischen die beiden Deckplättchen gegeben und durch Kapillarkräfte zwischen die Quarzplättchen gezogen. Nach Erkalten entsteht eine polykristalline Schicht mit einem mittleren Kristallitdurchmesser von ca. 0,2 mm.

2. Züchten der Einkristalle

Eine Serie von bis zu 10 solcher Doppelsandwiches werden in ein Quarzglasrohr gegeben, über das ein Doppelofen hinwegfährt. Dabei werden die AgCl-Schichten wieder aufgeschmolzen, und bei erneutem Erstarren entsteht an der Kristallisationsfront ein Einkristall. Abb. 5 zeigt die Züchtanlage maßstabsgetreu. Man erkennt links das Quarzglasrohr, das rechts (im Ofen) auf einem Stahlrohr aufliegt. Der Zücht-Ofen hängt in einem Fahrwerk, das über Seilzug und Spill von einem Getriebemotor mit variabler Drehzahl bewegt wird. Der Ofen selbst besteht aus einem Keramikgewinderohr mit getrennten Heizwicklungen I und II in einem Aluminiumgehäuse, das mit Leichtbau-Ofensteinen gefüllt ist. Zur besseren Temperaturverteilung

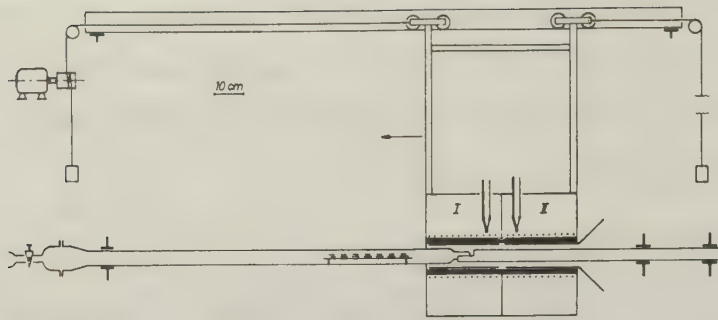


Abb. 5. Serienzüchtanlage für Kristallplättchen

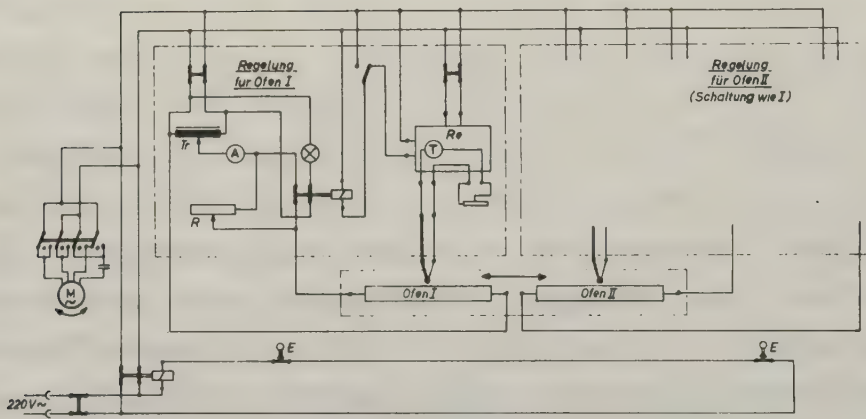


Abb. 6. Stromversorgung und Regelanlage zu Abb. 5.

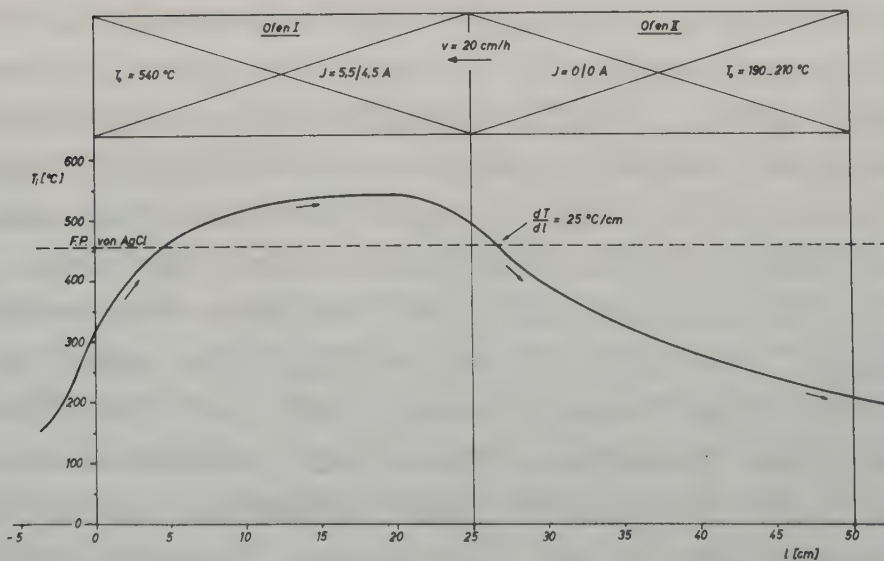


Abb. 7. Temperaturprofil des Doppelofens von Abb. 5.

befindet sich im Ofenteil I ein Kupferrohr und im Ofenteil II ein gleiches mit Kühlfahren.

Das Schaltbild in Abb. 6 zeigt Stromversorgung und Temperaturregelung. Über einen handgeregelten Transformator (Tr) erfolgt die einmalige Einstellung des Gesamt-Heizstromes. Ein Temperatur-Regler (Re) regelt über ein Ni-CrNi Thermoelement einen Teilstrom (etwa 10-20 % des Gesamtstromes), der über den Schiebe-Widerstand R eingestellt werden kann. Auf diese Weise erhält man eine relativ glatte Temperaturkurve. Die komplette Regelung ist zweimal (je für Ofen I und II) vorhanden. Abb.6 zeigt ferner den Antriebsmotor (M) mit Vorwahl der Drehrichtung und 2 Endschalter (E), die die Gesamtanlage nach beendtem Züchtgang abschalten.

Einmal einreguliert, arbeitet die Anlage nach Abwarten des Temperaturgleichgewichts (ca. 1 h) ohne weitere Aufsicht. Der Getriebemotor erlaubt je nach Wahl des Vorschaltgetriebes und der kontinuierlichen Drehzahlwahl (1:10) Züchtgeschwindigkeiten zwischen 1 mm/h und 1 m/h.

Eine typische Einstellung der AgCl-Züchtparameter zeigt Abb. 7: Züchtgeschwindigkeit $v = 20 \text{ cm/h}$; Spannung 100 V, Gesamtstrom = 5,5 A, durch Regler verminderter Strom = 4,5 A. Dies gilt für Ofen I, der so eine Regeltemperatur von $T_0 = 540^\circ\text{C}$ aufweist. Der Ofen II wird abgeschaltet und zeigt durch Temperaturleitung eine Gleichgewichtseinstellung von $T_0 = 190 \dots 210^\circ\text{C}$. Die am Ort des "Sandwichs" gemessene Temperatur T_1 zeigt das Temperaturprofil des Doppelofens. Man erkennt ein für die Homogenisierung der dotierten AgCl-Schmelze wichtiges langes Temperaturplateau, ferner einen Temperaturgradienten von 25°C/cm am Erstarrungspunkt (455°C) und einen anschließenden flachen Auslauf (Temperzone).

Bei der (vom Gesichtspunkt der Kristallzüchtung aus gesehen) relativ hohen Ziehgeschwindigkeit erhält man ein Kristallplättchen ($25 \times 15 \text{ mm}^2$) von bis zu 8 einkristallinen Streifen.

Der Vorteil der hohen Geschwindigkeit liegt in der auch bei hohen Verteilungskoeffizienten gut erhaltenen Homogenität der Dotierungssubstanz. Das Konzentrationsgefälle bewegt sich in tragbaren Grenzen.

3. Das fertige AgCl-Kristallplättchen

Nach abgeschlossenem Züchtprozeß konnte die Grundplatte des Sandwichs durch Einlegen in Wasser meist abgelöst werden. Bei allen weiteren Untersuchungen, insbesondere auch bei der Verwendung der ca. 0,2 mm dicken AgCl-Plättchen als Detektor ließen wir sie wegen der sonst gegebenen Gefahr der plastischen Verformung am Quarz-Deckgläschen haften. Unter günstigen Zuchtbedingungen erhält man - falls keine sehr hohen Dotierungen vorliegen - saubere, glasklare Plättchen mit einer der abgelösten Grundplatte entsprechenden glatten Oberfläche. Hier sollen nur einige Besonderheiten anhand von Mikro-Aufnahmen aufgezeigt werden:

Abb. 8 zeigt einen Polykristall vor der Einkristallzüchtung mit Korngrenzen und einigen Luftblasen. Die Bildung der Blasen ist von vielen Faktoren abhängig und in (32) bereits näher erläutert. Daß ein Mikrobläschen ein neues Keimbildungszentrum sein kann, beweist Abb. 9, wo in einer einkristallinen Matrix von links nach rechts ein neuer Einkristallstreifen entsteht. In Abb. 10 ist ein sehr blasenreicher Bereich gezeigt. Große Blasen liegen meist halbkugelförmig an den Glasplatten an. Man sieht in Abb. 10 4 Blasen an der freien Oberfläche und zahlreiche Blasen an der unteren Grenzfläche zum noch anhaftenden Quarzglas hin. Letztere bilden kräftige Spannungshöfe, während die 4 freiliegenden Blasen im polarisationsoptischen Bild der gleichen Kristallstelle (Abb. 10 b) keine Spannungsbildung zeigen. In Abb. 11 erkennt man daneben auch den Distanzfaden als mögliche Ursache für innere Kristallverspannungen. Ein Beispiel einer mit 1 n $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösung 3 sec lang geätzten AgCl-Plättchenoberfläche zeigt Abb. 12. Die dunkle von oben nach unten gehende Korngrenze trennt eine

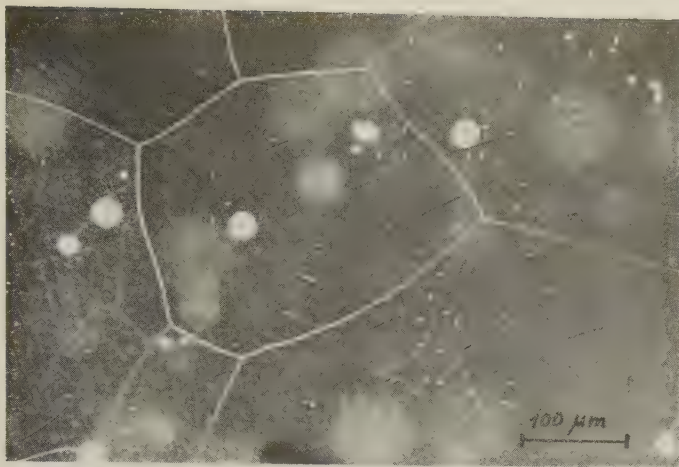
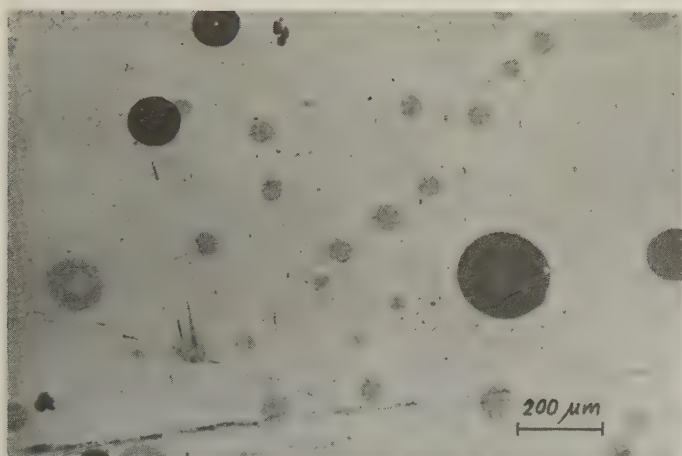


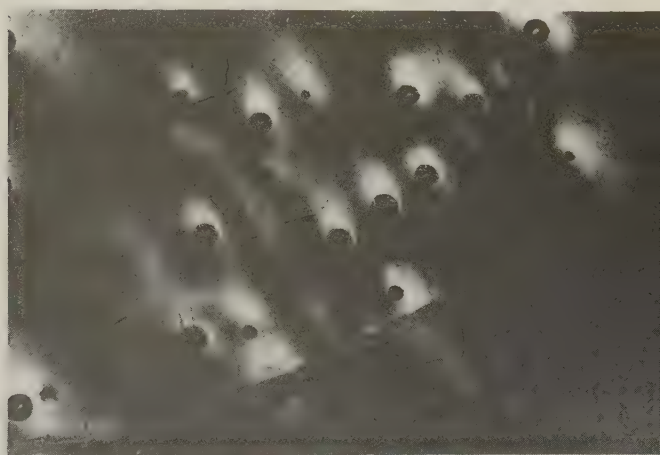
Abb. 8. AgCl-Polykristallplättchen.
Auflicht, Dunkelfeld



Abb. 9. AgCl-Kristallplättchen mit
neu entstehendem Ein-
kristallbereich rechts.
Auflicht, Dunkelfeld



(a)



(b)

Abb. 10. AgCl-Kristallplättchen mit einer Korngrenze und großen Blasen
an beiden Oberflächen, die zur Glasgrenzfläche Spannungshöfe
bilden. (a) Auflicht, Hellfeld;
(b) Durchlicht, zwischen gekreuzten Polarisatoren

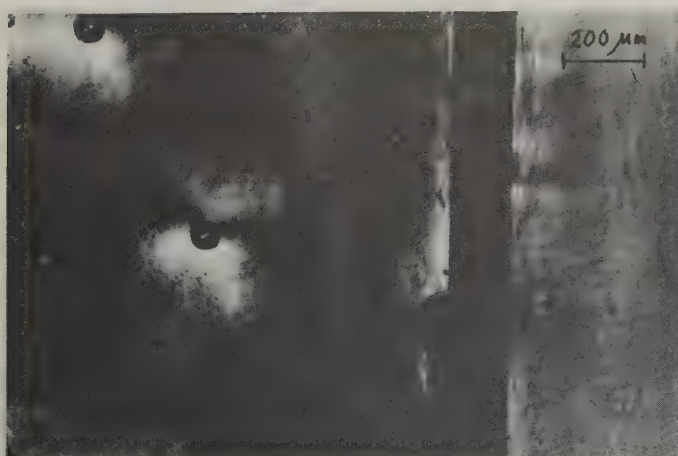


Abb. 11. AgCl-Kristallplättchen mit
Spannungshöfen um Blasen
und Glasfaden. Durchlicht,
zwischen gekreuzten Pola-
risatoren

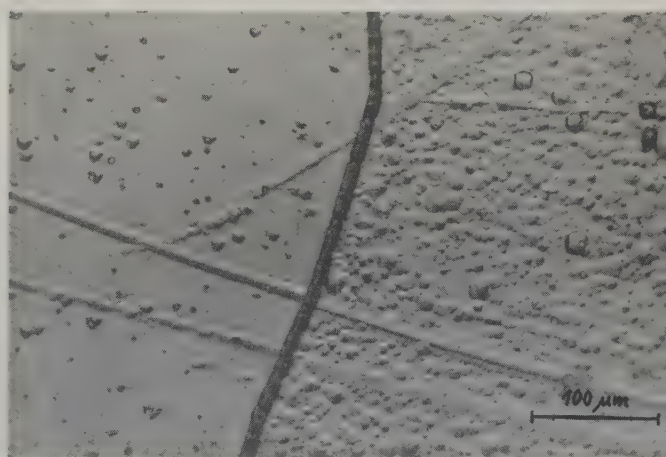


Abb. 12. AgCl-Kristallplättchen
angeätzt, Korngrenze und
verschieden orientierte
Kristallbereiche.
Auflicht, Hellfeld

schwach angegriffene Oberfläche (links) von einer stark angegriffenen Oberfläche (rechts). Aufgrund der Gestalt der Versetzungsgrübchen - fast dreiseitige Pyramide links und quadratische Pyramide rechts - liegt die linke Oberfläche in der Nähe einer $\{111\}$ -Ebene, während die rechte nahezu parallel zu einer $\{100\}$ -Ebene liegt. Die von links nach rechts verlaufenden, die Korngrenze schneidenden Linien sind Kratzer.

Die Abb. 8-12 geben gleichzeitig Beispiele für die Sichtbarmachung von Großwinkel-Korngrenzen im AgCl. Diese sind gut erkennbar im Auflicht-Dunkelfeld (Abb. 8 u. 9), ferner im Durchlicht zwischen gekreuzten Polarisatoren infolge der scharf abbrechenden spannungsoptischen Figuren (Abb. 10 b). Auch im Ätzbild (Abb. 12) ist die Großwinkelkorngrenze als tiefer Graben sehr gut sichtbar. Dagegen hat man bei Hellfeldbetrachtung, sowohl im Auf- als auch im Durchlicht (Abb. 10 a), im allgemeinen Mühe, eine Korngrenze zu erkennen.

AgCl-Kristalle zeigen manchmal im Innern große Silberabscheidungen und whiskerähnliche Ag-Gebilde mit kristallographischen Vorzugsorientierungen, wie sie auch von Childs und Slifkin (35) gesehen wurden. Die Untersuchungen dieser Phänomene sind noch im Gange. Auf die in vielfacher Hinsicht störenden Abstandsfäden (Abb. 3 u. 11) kann bei geänderter Verfahrensweise verzichtet werden. Wir haben bereits darüber berichtet (33). Die Methode ist noch in der Entwicklung.

Es soll noch erwähnt werden, daß wir bei einigen Kristallen einen Temperprozeß (etwa 1 Tag bei 420°C) dem Züchtvorgang anschließen, um die Detektorqualität entscheidend zu verbessern. Da die damit verbundenen festkörperphysikalischen Vorgänge bis jetzt noch nicht ganz geklärt sind, wird auf eine weitere Erörterung des Temperns verzichtet.

C. EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN AgCl-KRISTALLEN

Neben der direkten Untersuchung der gezüchteten Kristallplättchen auf Eignung als Spurendetektoren ist es ganz allgemein wichtig zu wissen, wie sich die physikalischen Eigenschaften der AgCl-Kristalle bei einer gezielten Dotierung verändern. Die hierbei gewonnenen Erkenntnisse könnten wiederum wertvolle Hinweise für eine Verbesserung der Detektoreigenschaften der Kristallplättchen liefern. Eine sehr ausführliche Zusammenstellung über die bisher an Silberhalogeniden vorgenommenen physikalischen Untersuchungen findet man bei Eggers, Haase und Matejec (36).

Die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen an AgCl-Kristallen konzentrierten sich auf 3 Gebiete, nämlich Härtemessungen, optische Absorptionsmessungen und elektronenmikroskopische Untersuchungen. Dabei stand immer die Frage nach dem Einfluß der Cd-Dotierung im Vordergrund.

I. Ritzhärtemessungen

Eine experimentelle Methode, die über die mechanischen Eigenschaften der selbstgezüchteten Kristalle bereits gewisse Aussagen zuläßt, ist die Messung der Ritzhärte. Gemäß der Mohs'schen Härteskala (Talk = 1, Steinsalz = 2, Diamant = 10) wird in der Literatur für AgCl ein Ritzhärtewert von 1,3 angegeben (37). Abweichend von der Mohs'schen Ritzmethode wurden die folgenden Untersuchungen mit einem Ritzhärteprüfgerät (DIRITEST der Firma Zeiss, Jena) unter Verwendung einer Vickerspyramide (Diamant mit Flankenwinkel 136°) ausgeführt. Üblicherweise (s.z.B. (38)) wird hierbei die Ritzhärte H definiert als $H = c \cdot P/d^2$, wobei P die Belastung, d die Ritzgrabenbreite bedeuten. Der Faktor c wird in unserem Falle konstant gleich 1 gesetzt. Die Messungen an AgCl wurden bei einer Ritzgeschwindigkeit von etwa 0,25 mm/sec mit $P = 1$ p oder $P = 5$ p durchgeführt. Dabei lag entweder die Pyramidenkante oder die Pyramidenfläche in Ritzrichtung. Es ergaben

sich Ritzgrabenbreiten von 8 bis 50 μm . Bei den hier durchgeführten Ritzhärteexperimenten wurde an einem reinen AgCl-Einkristall die Anisotropie der Ritzhärte gemessen und an einer Serie von AgCl: Cd-Kristallplättchen der Dotierungseinfluß auf die Ritzhärte untersucht.

1. Ritzhärte-Anisotropie von AgCl-Einkristallen

a) Durchführung der Messungen

Nach dem unter B.III. beschriebenen Bridgman-Verfahren wurde aus zonengereinigtem Ausgangsmaterial ein hochreiner Einkristallzylinder gezüchtet. Die röntgenographische Orientierung ergab eine der $\langle 211 \rangle$ -Richtungen für die Zylinderachse. Um die Orientierung der für die Ritzversuche vorgesehenen Ebenen in eindeutiger Weise vorgeben zu können, wurde als Bezugsrichtung die $[2\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung gewählt. Die Messungen der Ritzhärte wurde dann auf der (111)-, der (0 $\bar{1}\bar{1}$)- und der (001)-Ebene vorgenommen. Die Flächen wurden zunächst auf Schmirgelpapier angeschliffen und dann unter Abtragung von etwa 1 mm Material in 10%iger KCN-Lösung poliert. Nach sorgfältigem Waschen in dest. Wasser und anschließendem Trocknen wurden Lauediagramme angefertigt (Abb. 13). Man erkennt eine leichte Polygonisierung; die Erkennbarkeit der Symmetrie war aber dadurch nicht beeinträchtigt. Der Kristall wurde auf einen Drehtisch geklebt und in radialer Richtung in Winkelstufen von 10° geritzt. Die Ritzgrabenbreite wurde jeweils über eine Grabenlänge bzw. über mehrere Gräben gemittelt.

b) Ergebnisse und Diskussion

Die Ritzhärtewerte sind in den Abb. 14, 15, 16 im Polarkoordinatensystem als Radiuslänge dargestellt. In diesen Diagrammen sind zur Verdeutlichung die drei ausgewählten kristallographischen Ebenen in einem solchen Maßstab dargestellt, als wären sie einem Würfel der Kantenlänge 6 cm entnommen worden. Die Punkte bezeichnen direkte, die Kreise sind symmetrisch übertragene Meßwerte. In diesem Übertragungsverfahren liegt

eine gewisse Ungenauigkeit und Willkür. Da auf diese Weise jedoch eine größere Anschaulichkeit gewonnen wird, und die Meßwerte ohnehin nur auf $\pm 10\%$ genau sind, erscheint dieses Verfahren trotzdem gerechtfertigt.

Zur Deutung der Kurven muß kurz auf die theoretischen Grundlagen zur Härteanisotropie eingegangen werden. Das Ritzen einer Kristalloberfläche mit einer Diamantpyramide ist ein recht komplexer Vorgang. Bruch-, Spalt- und Abgleitprozesse können die anisotrope Grabenbreite bestimmen. In (39) wird z.B. die beobachtete Anisotropie der Ritzhärte auf NaCl-Kristallen mit der Lage der Ritzrichtungen in bezug auf die Spalttrichtungen gedeutet: Auf $\{100\}$ liegt $H_{\min} \parallel \langle 100 \rangle$ und $H_{\max} \parallel \langle 110 \rangle$. Winter (38) z.B. zeigt experimentell und theoretisch eine Abhängigkeit der Ritzhärte auf Cu-Kristallen von dem dort vorliegenden Gleitsystem $\langle 110 \rangle \{111\}$. Für eine Vickerspyramide mit Kante in Ritzrichtung ergab sich auch dort wie bei NaCl (39) auf $\{100\}$ ein $H_{\min} \parallel \langle 100 \rangle$ und ein $H_{\max} \parallel \langle 111 \rangle$. Silberchloridkristalle sind bei Raumtemperatur duktil und nicht spaltbar. Nye (40) fand bei Raumtemperatur zwar die Gleitrichtung in $\langle 110 \rangle$ aber keine definierte Gleitebene (pencil glide). Bei tiefen Temperaturen dagegen verhält sich AgCl ähnlich NaCl: Granzer u.a. (41) fanden an getemperten AgCl-Kristallen als Spaltflächen die $\{100\}$ -Ebenen bei der Temperatur des flüssigen Wasserstoffs (ca. 20°K); Gorbach u.a. (42) stellten bei der Temperatur des flüssigen Sauerstoffs (ca. 90°K) die $\{110\}$ -Ebene als Gleitebene fest.

Die bei Raumtemperatur ermittelten Ritzhärtekurven an AgCl deuten bereits auf einen Härteverlauf wie bei NaCl (39) hin. So ist in Abb. 14 auf (111) eine deutlich erhöhte Härte beim Ritzen zur "Ecke" hin zu erkennen: In Richtung $[\bar{2}11]$ wird etwa die dreifache Ritzhärte wie in Richtung $[2\bar{1}\bar{1}]$ bzw. $[\bar{1}2\bar{1}]$ gemessen. Auch auf der $(0\bar{1}1)$ -Fläche ist die Ritzhärteverteilung mit der bei NaCl gemessenen identisch:



Abb. 13. Röntgenbeugungsdiagramm (Laue-Aufnahme) der (111)-Ebene des AgCl-Einkristalls zu den Abb. 20, 21, 22.

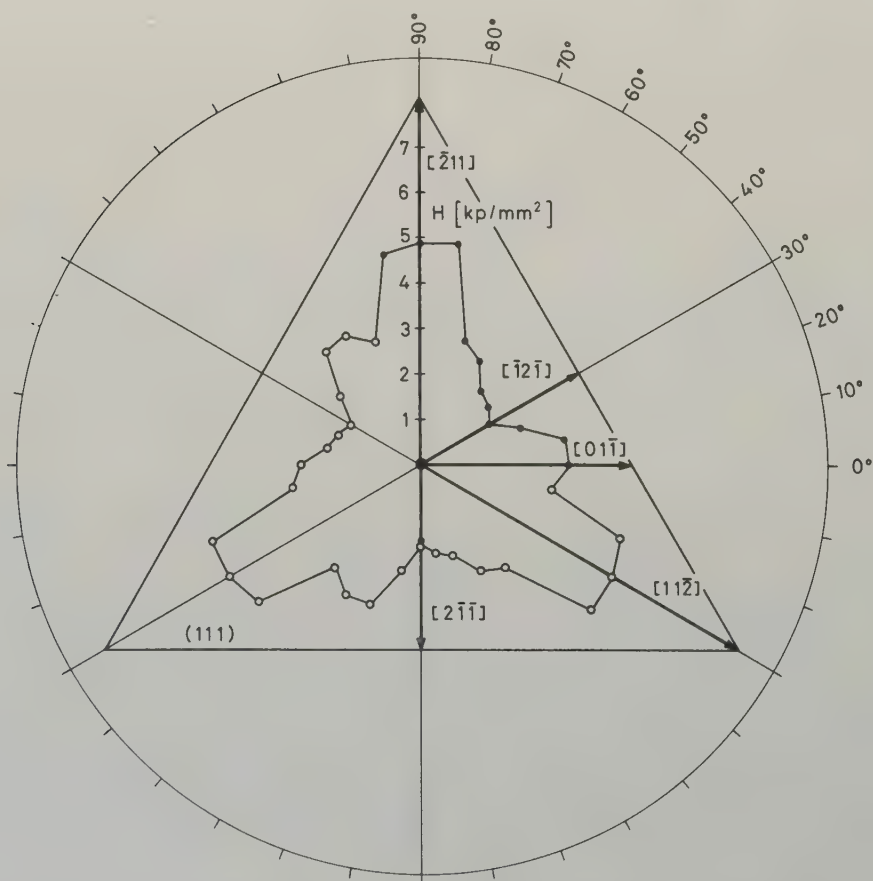


Abb. 14. Ritzhärte auf der (111)-Ebene eines AgCl-Einkristalls, $P = 5 \text{ p}$

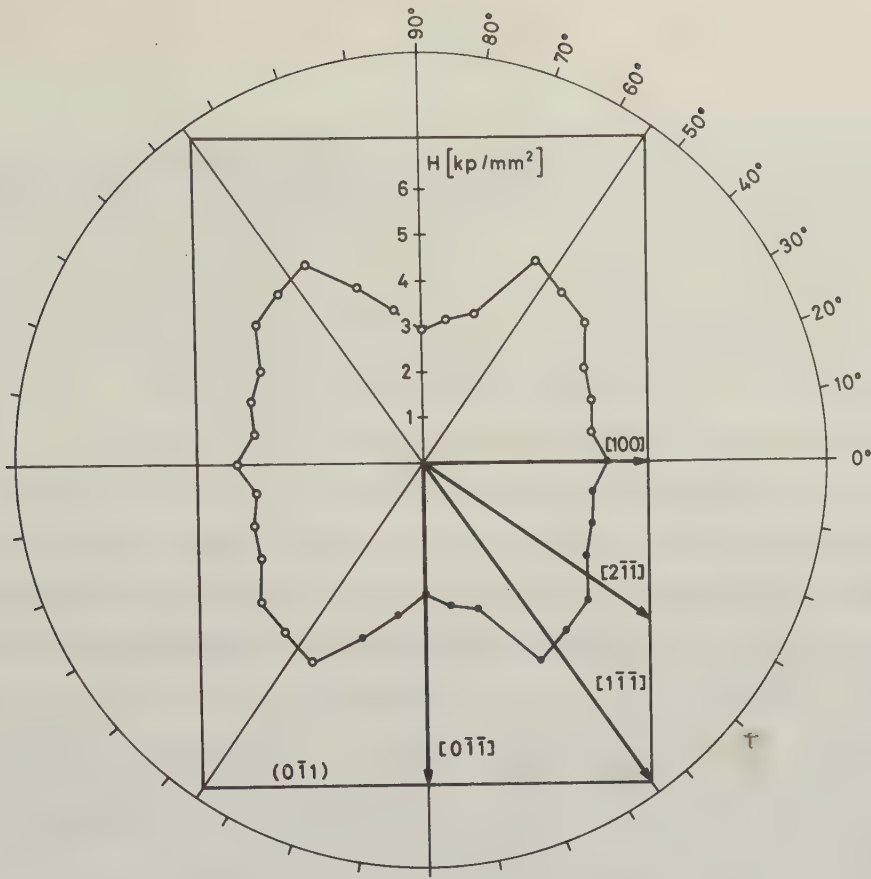


Abb. 15. Ritzhärte auf der $(0\bar{1}1)$ -Ebene eines AgCl-Einkristalls
 $P = 5 \text{ p}$

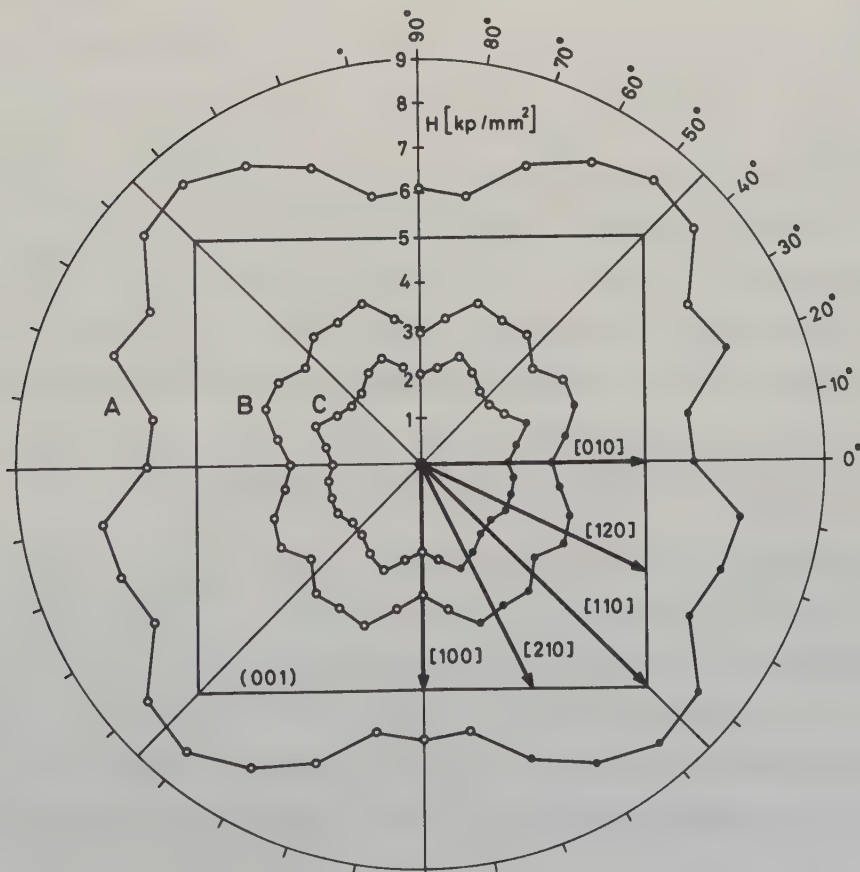


Abb. 16. Ritzhärte auf der (001) -Ebene eines AgCl-Einkristalls
 Kurve A: $P = 1 \text{ p}$, Fläche in Ritzrichtung
 Kurve B: $P = 1 \text{ p}$, Kante in Ritzrichtung
 Kurve C: $P = 5 \text{ p}$, Kante in Ritzrichtung

$H_{\max}$ in $[1\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung und $H_{\min}$ in $[0\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung (Abb. 15). Die Messungen auf der Würfel­fläche (Abb. 16) zeigen dagegen nur in der Kurve A ($P = 1$ p, Fläche in Ritzrichtung) einen dem NaCl ähnlichen Verlauf, d.h. $H_{\max}$ in Richtung $[110]$ und $H_{\min}$ in Richtung $[010]$. Dies trifft annähernd auch noch für die Kurve B ($P = 1$ p, Kante in Ritzrichtung) zu, obwohl hier noch zusätzlich ein relatives Minimum in der Nähe der $[110]$ -Richtung, die größte Härte jedoch etwa in Richtung $[210]$ zu finden ist. Für die Kurve C ($P = 5$ p, Kante in Ritzrichtung) liegt anscheinend in $[010]$ und in $[110]$ ein Minimum vor, dagegen zeigt sich auf den Radiusvektoren dazwischen eine größere Härte.

Gerade aus den Härte­diagrammen der Abb. 16 wird deutlich, wie komplex die mit dem Ritzen einhergehenden Vorgänge sind, wenn a) das Ritzwerkzeug pyramidenförmig ist,

b) das Ritzen bei Raumtemperatur erfolgt und

c) ein so hochduktiler Material wie AgCl vorliegt.

Wie bei (38) wird auch hier eine Lastabhängigkeit der Härte festgestellt: Man erkennt, daß $H_{1p} \approx 1,5 \cdot H_{5p}$, wobei die Pyramidenkante in Ritzrichtung liegt. Der Härtevergleich Kante (K) oder Fläche (F) in Ritzrichtung bei gleicher Last $P = 1$ p ergibt $H_F \approx 2 \cdot H_K$. Dies ist verständlich, wenn man bedenkt, daß das Material beim Ritzen seitlich in den Ritzgraben­wall herausgedrückt werden muß, was bei der Lage "K" leichter vonstatten geht. Die Mehrfachmaxima und -minima auf (001) bei der Lage K beweisen, daß gerade in dieser Kombination offensichtlich mehrere Gleitebenen bei Raumtemperatur gleichzeitig wirksam werden. Bei sehr tiefen Temperaturen dürften diese Härte­kurven anders ausgeprägt sein.

Aus der gefundenen Anisotropie der AgCl-Ritzhärte bei Raumtemperatur ist die Verwandtschaft zu NaCl zu erkennen. Da die Härtemessungen aber von so vielen experimentellen Voraussetzungen, der großen Meßungenauigkeit (± 10 %) und auch subjektiven Versuchsdurchführungen abhängen, darf man aus den gezeigten Diagrammen höchstens grob qualitative Schlüsse ziehen.

2. Ritzhärte von AgCl:Cd-Kristallen

a) Durchführung der Messungen

Nach dem in Abschnitt B.IV.1. beschriebenen Verfahren wurden Cd-dotierte AgCl-Schichten zwischen Quarzglasplättchen eingeschmolzen. Von der Einkristall-Züchtung wurde bewußt abgesehen, um Anisotropieeffekte klein zu halten. Nach Ablösen des Grundplättchens in dest. H_2O wurden die so freigelegten sehr glatten Flächen ohne weitere Nachbehandlung geritzt. Da Polykristalle vorlagen, erhielt man wegen Überfahrens mehrerer verschieden orientierter Kristallite an demselben Ritzgraben unterschiedliche Breiten. Der mittlere Härtewert wurde durch Ausmessen mehrerer solcher Grabenteilstücke sowie aus in mehreren Richtungen gezogenen Gräben gewonnen. Alle Messungen wurden mit einer Belastung von $P = 1 \text{ p}$ (Pyramidenkante in Ritzrichtung) durchgeführt. Härtewerte sind auch hier mit einem Fehler von etwa $\pm 10 \%$ behaftet.

b) Ergebnisse und Diskussion

In Abb. 17 sind die Härtewerte als Funktion der Cd-Dotierung (c_{Cd}) aufgetragen. Beim Vergleich des reinen Kristalls mit den durchschnittlichen Härtewerten aus den Anisotropie-Kurven (Abb. 14, 15, 16) erweist sich eine AgCl-Plättchen-Oberfläche als etwas weicher als ein anpolierter großer Einkristall. Die Ritzhärtemessungen erlauben also kaum absolute Wertangaben, da neben der Subjektivität des Meßverfahrens auch die Vorgeschichte der Meßproben stark eingehen.

Es ist bekannt, daß zweiwertige Kationenzusätze zu Silber- und Alkalihalogeniden eine Verfestigung der Kristalle bewirken. Zum Nachweis dieses Effekts können Verfestigungskurven und Eindruck- oder Ritzhärtemessungen dienen. Allgemein ist die Verfestigung durch Verankerung (pinning) von Versetzungen an Verunreinigungscentren zu deuten, was die Abgleitung erschwert. Man hat zu unterscheiden zwischen der Ausscheidungshärte (precipitation hardening) und der Lösungshärte (solution hardening). Letztere hat man bei AgCl:Cd bis

zu einer Zusatzkonzentration von etwa 500 ppm Cd^{2+} zu erwarten. Darüber hinaus muß man mit einer zunehmenden Ausscheidungshärte rechnen. Der Übergangsbereich kann wegen auftretender Cluster- und möglicherweise Überstrukturbildung recht groß sein. Gerade die oben erwähnte Vorbehandlung des Kristalls (Temperung, Abkühlgeschwindigkeit u.ä.) ist entscheidend für den Anteil des gelösten Zusatzes; ihren Festigkeitseinfluß konnte z.B. Kupča (43) an $\text{NaCl}:\text{Ba}^{2+}$ -Kristallen zeigen. Bei der vorliegenden Ritzhärtemessung an $\text{AgCl}:\text{Cd}^{2+}$ (Abb. 17) ist ein zunächst kräftiger Anstieg der Ritzhärte von etwa 4 kp/mm^2 beim reinen Kristall auf etwa 9 kp/mm^2 bei 600 ppm CdCl_2 -Zugabe festzustellen. Bis 1 % CdCl_2 -Zugabe nimmt die Härte weiter zu, allerdings mit wesentlich geringerem Anstieg.

Kupča (43) vergleicht seine Fließspannungsmessungen $\tau = f(c)$ an $\text{NaCl}:\text{Ba}^{2+}$ mit dem theoretischen Ansatz von Fleischer (44), der den Einfluß der Zusatzkonzentration c auf die Fließspannung mit einer Wechselwirkung von Fremdkation-Lücken-Paaren (tetragonales Störungszentrum) mit Versetzungen zurückführt. Kupča findet bei niedrigen Dotierungen eine Übereinstimmung mit der Fleischerschen Theorie, wonach $\tau \sim c^{1/2}$. Trägt man unsere Ritzhärtemessungen auf doppelt-logarithmischem Papier auf (Abb. 18), so findet man für AgCl angenäherte $H \sim c^{1/7}$ für $c = 50 \text{ ppm} \dots 1 \% \text{ Cd}$. Wenn auch τ und H nicht quantitativ vergleichbar sind, so ist doch der Unterschied zwischen den beiden Abhängigkeiten relativ groß.

Die Untersuchungen von Luhman u. Gorum (45), Parasnis (46) und Kabler u.a. (47) zeigen bereits eine bemerkenswerte Zunahme der Festigkeit (45, 47) bzw. der Eindruckhärte (46) für zweiwertige Kationenzusätze zu AgCl . Besonders bei Cu-Dotierung konnte durch das Züchtverfahren unter N_2 - oder Cl_2 -Atmosphäre eine Verfestigung nur bei vorliegenden Cu^{2+} -Ionen gefunden werden. Im Gegensatz zu den Deutungen von Fleischer (44) und Kupča (43) zur Verfestigung von mit zweiwertigen Kationen dotiertem NaCl konnten Kabler u.a. (47)

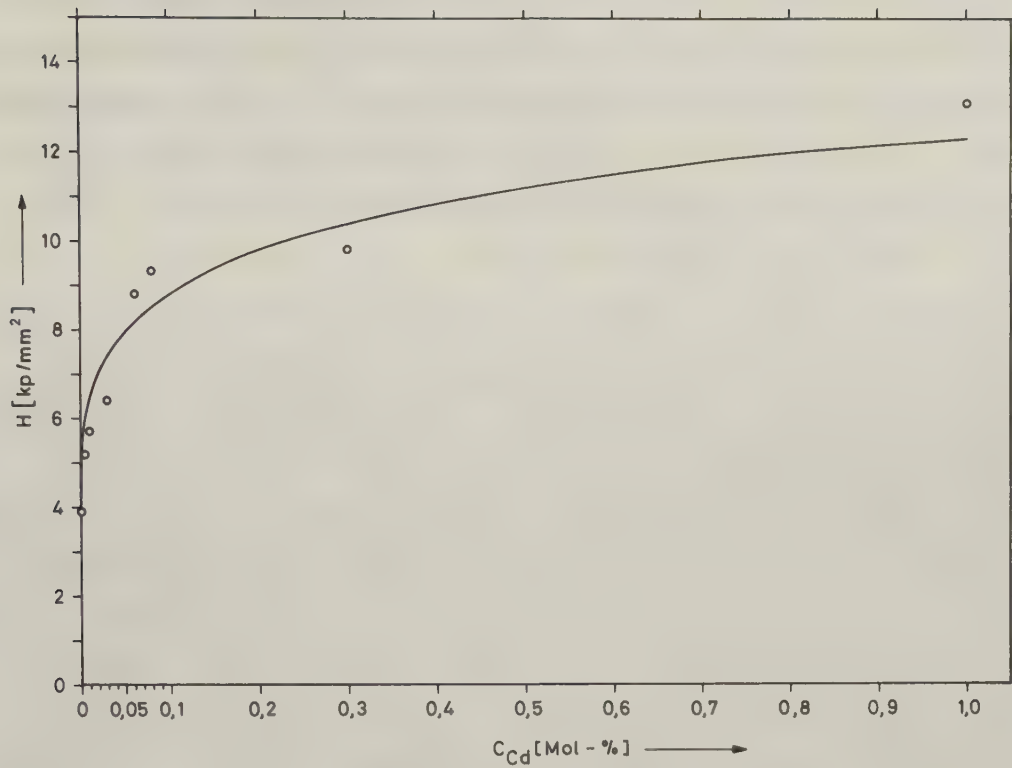


Abb. 17. Ritzhärte von AgCl-Polykristallen in Abhängigkeit von der Cd-Dotierung

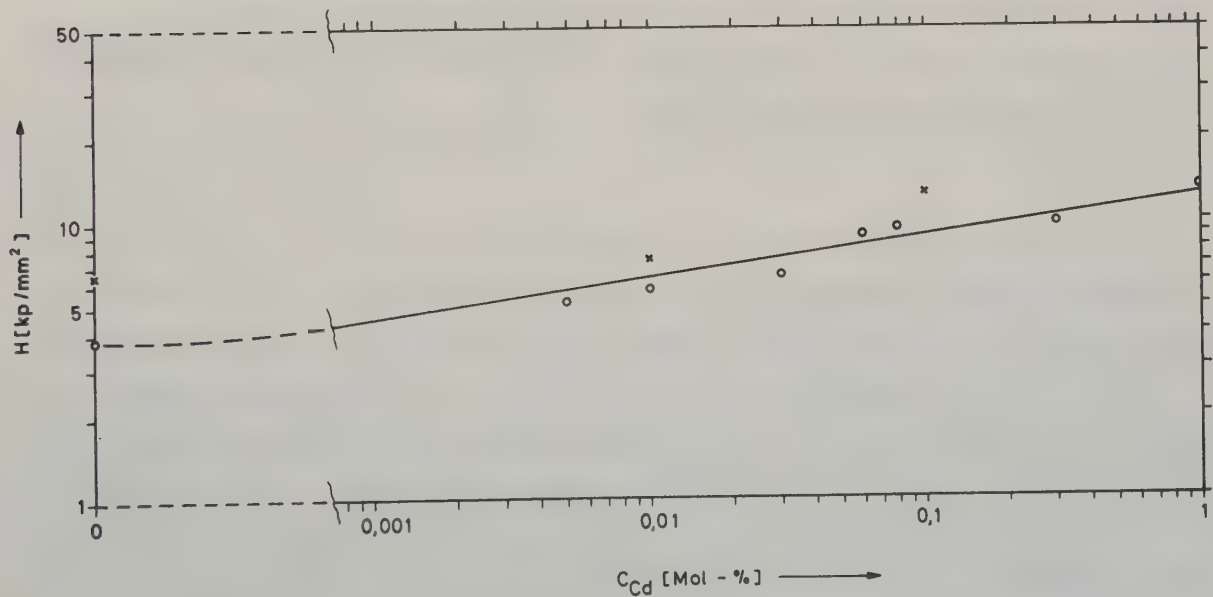


Abb. 18. Werte von Abb. 17 in doppeltlogarithmischer Achsen-
teilung,
* = Eindruckhärte - Meßwerte von Parasnis (45)

an mit zweiwertigen Kationen dotiertem AgCl aufgrund von Spannungserholungskurven die gelösten zweiwertigen Kationen als entscheidende Haftstellen für Versetzungen nachweisen: Die relativ niedrige Beweglichkeit von Cd^{2+} (48) (gegenüber Ag^+ (49)) im AgCl-Gitter steht in gutem Einklang mit den von ihnen experimentell gefundenen Wanderzeiten der Haft-Punkte zu den Versetzungen.

Parasnis (46) führt die Härtezunahme bei Cu^{2+} und Cd^{2+} in AgCl vorwiegend auf Ausscheidungshärte zurück mit einem geringen Anteil von Lösungshärte. Da die dort mit $\text{AgCl}:\text{Cd}^{2+}$ -Plättchen durchgeführten Experimente mit den unsrigen am meisten verwandt sind, wurden jene Ergebnisse in das Diagramm Abb. 18 mit eingetragen. Obwohl Parasnis die Eindruckhärte gemessen und unter Verwendung von $P = 3 p$ einen anderen Vorfaktor bei der Härteformel $H \sim P/d^2$ benutzt hat, zeigen die gemessenen Härtewerte die gleiche Größenordnung und eine ähnlich ansteigende Tendenz. Aus anderen Gründen - röntgenographische (50) und elektronenmikroskopische Untersuchungen (s. Abschn. III) an hoch- Cd^{2+} -dotiertem AgCl - ist ein exakter Übergang von einer einzigen Lösungsphase zu einem Zweiphasensystem offensichtlich nicht gegeben, so daß aus den vorliegenden Härtemessungen bei niedrigen Cd-Dotierungen auf Lösungshärtung und bei höheren Dotierungen (bis 1 % betrachtet) auf eine Mischung von Lösungs- und Ausscheidungshärte geschlossen werden kann.

II. Optische Absorptionsmessungen an AgCl:Cd-Kristallen

Für die Dekoration der Teilchenspuren in den AgCl:Cd-Kristalldetektoren ist es wichtig, den Verlauf der optischen Absorption der Kristalle zu kennen.

Über die Form des langwelligen Ausläufers der AgCl-Absorptionskante bei Raumtemperatur liegen besonders von Moser und Urbach (51) genaue Messungen vor. Der Einfluß der Cadmiumdotierung auf die Absorption von AgCl und AgBr wurde von Meinig u.a. (52) untersucht, allerdings nur in einem Temperaturbereich von etwa 250 bis 400 °C, in dem relativ große Mengen von CdCl₂ in AgCl vollständig gelöst werden. Bei Raumtemperatur liegt die Löslichkeitsgrenze bei einigen hundert ppm Cd²⁺. Da bei den höher dotierten Kristallen im Rahmen unserer Arbeiten der Einfluß des gelösten und des ausgeschiedenen CdCl₂ interessiert, wurde der Cd-Einfluß auf den langwelligen Ausläufer der AgCl-Absorptionskante gerade bei Raumtemperatur näher untersucht. Wir haben allerdings keine systematischen Absorptionsmessungen an Kristallen verschiedener Dicke durchgeführt, sondern begnügten uns - gerade im Hinblick auf die praktische Detektorentwicklung - mit orientierenden Messungen an Standard-AgCl-Plättchen.

1. Durchführung der Messungen

Die Kristallplättchen wurden nach dem in Kap. B.IV. beschriebenen Verfahren gezüchtet und ohne weitere Temperung sofort zur Messung benutzt.

Die Messungen wurden in Anlehnung an die Methode von Moser u. Urbach (51) durchgeführt. Von jeder Probe wurde in einem Einstrahl-Gerät (Spektralphotometer PMQ II der Fa. Zeiss) die optische Dichte $D(\lambda) = \lg [\Phi_0 / \Phi_T(\lambda)]$ in einem Bereich von etwa 380 bis 1000 nm festgestellt (Φ_0 = eintretende Strahlungsleistung, Φ_T = durchgelassene Strahlungsleistung). Die Halbwertsbreite wurde durch laufende Spaltverstellung in etwa konstant gehalten. Die AgCl-Schichten hatten eine Stärke von 0,13 bis 0,2 mm und hafteten während der Messungen fest auf einer 1 mm starken Herasil-Quarzglasunterlage.

Im sichtbaren Wellenlängenbereich und besonders bei niedrigen Dotierungen gehen die Reflexionsverluste relativ stark in die Messungen der optischen Dichte bzw. der Transmission ein. Die Absorptionsverluste im Quarzglas können dagegen vernachlässigt werden. Die 3 Reflexionsschichten sind

- (a) Luft - Quarzglas
- (b) Quarzglas - AgCl
- (c) AgCl - Luft

Das Reflexionsvermögen wurde gemäß der vereinfachten Beer-schen Formel $R = (n_2 - n_1)^2 / (n_2 + n_1)^2$ für jede Schicht berechnet. Dazu wurden für das Quarzglas "Herasil" die Brechungsindices von Rodney u. Spindler (53) benutzt. Für AgCl wurde die Dispersionskurve nach den Werten von Schröter (54) und von Tilton u.a. (55) gezeichnet. Der Einfluß der Dotierungen auf den Brechungsindex konnte vernachlässigt werden. Die beiden Dispersionskurven sind in Abb. 19 wiedergegeben. Nach graphischer Subtraktion des gesamten Reflexionsverlustes von der optischen Dichte konnte sodann der Extinktionskoeffizient K berechnet werden:

$$K = \frac{\ln 10}{x} \cdot \left[\lg \frac{\Phi_o}{\Phi_T} - \lg \frac{1}{(1-R_a)(1-R_b)(1-R_c)} \right]$$

In Abb. 20 ist $K(\lambda)$ bzw. $K(E)$ aufgetragen. Zur besseren Veranschaulichung wird für die Kristalldicken $x = 0,02$ cm und $x = 0,2$ cm auch die Reintransmission $\theta = \Phi_{T,i} / \Phi_{O,i} = \exp(-Kx)$ angegeben.

2. Ergebnisse und Diskussion

Die Meßmethode gestattet, die K -Werte im Bereich von etwa $0,5$ bis 200 cm^{-1} zu erfassen. In diesem Bereich deckt sich die gemessene Absorptionskante von reinem und mit ≤ 300 ppm Cd^{2+} -dotiertem AgCl gut mit den an reinem AgCl gewonnenen Ergebnissen von Moser und Urbach (51). Bei 600 und 1000 ppm Cd-Zusatz beginnt etwa ab $K = 5 \text{ cm}^{-1}$ entsprechend einer Wellenlänge von 410 nm ein merklich langsames Abfallen der

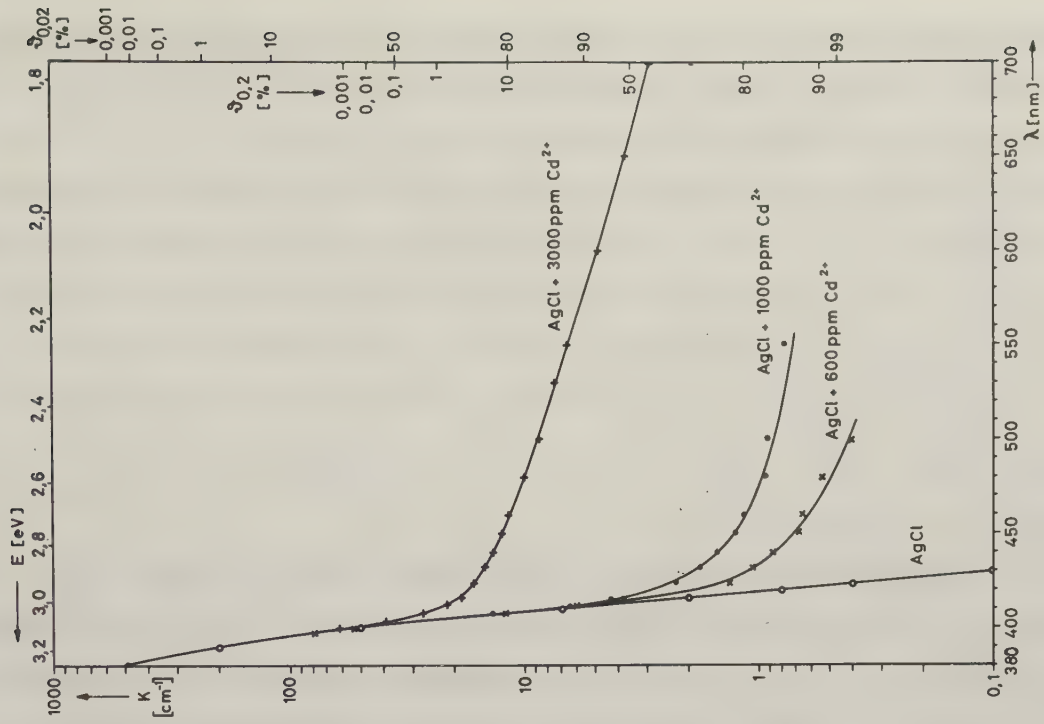


Abb. 20. Extinktionskurven von $\text{AgCl}:\text{Cd}$ -Kristallen; $\theta = \text{Reintransmission}$ für 0,2 bzw. 0,02 cm Dicke

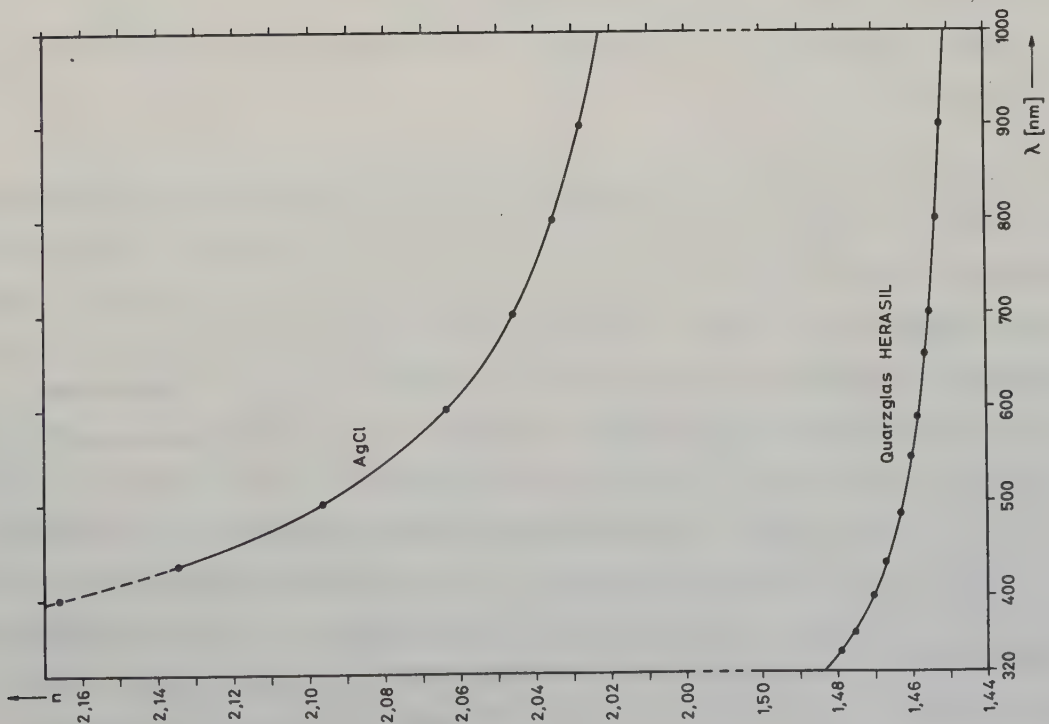


Abb. 19. Dispersionskurven von AgCl (kombiniert aus (54,55)) und von Quarzglas (53)

Absorptionskonstante mit zunehmender Wellenlänge. Bei 3000 ppm Cd hebt sich die Absorptionskurve bereits ab $K = 50 \text{ cm}^{-1}$ erheblich von der Kante des reinen AgCl ab.

Vergleicht man die hier vorliegenden Ergebnisse mit denen von Meinig u.a. (52), so ist auch qualitativ keine Übereinstimmung festzustellen. Die Erklärung ist darin zu suchen, daß in (52) im Gegensatz zu unseren Messungen ein echter AgCl: Cd^{2+} -Mischkristall vorlag (Hochtemperaturmessungen). Meinig u.a. (52) stellten in diesem Mischkristallbereich bis etwa 2 Mol% CdCl_2 fast keine Veränderung der AgCl-Absorptionskante fest. Bei höheren Dotierungen (bis $c = 25 \% \text{ CdCl}_2$ bei 400°C) erleidet die Kante unter Beibehaltung ihrer Gestalt eine beachtliche Violettverschiebung, wobei in guter Annäherung gilt: $\Delta E \sim c_{\text{Cd}}$. Im Mischkristall AgCl: Cd^{2+} gilt somit eine lineare "Mischungsregel" für die Kantenabsorptionskonstanten der beiden Komponenten. Nach Fesefeld (56) ist die Absorptionskante des reinen CdCl_2 gegenüber der von reinem AgCl um etwa 100 nm in Richtung kürzerer Wellenlängen verschoben. Von diesen Zusammenhängen kann in unserem Falle wegen des einerseits zu niedrigen Cd-Zusatzes und wegen der schon von anderen Autoren (49, 56) an Hand von Leitfähigkeitsmessungen an AgCl: Cd^{2+} gefundenen geringen Löslichkeit von (einigen 100 ppm) Cd^{2+} in AgCl bei Raumtemperatur nichts zu merken sein.

Die von uns gemessene "Absorption" im Sichtbaren ist praktisch als eine zu einem beachtlichen Teil auf Streuung zurückzuführende Extinktion anzusehen. Die beim Betrachten der Oberfläche eines z.B. mit 3000 ppm Cd^{2+} dotierten Kristalls auffallende bläuliche Grautrübung erweist sich im Spektrum als stark λ -abhängige Extinktion, wobei der Extinktionskoeffizient K stetig von 25 cm^{-1} bei $\lambda = 410 \text{ nm}$ auf 3 cm^{-1} bei $\lambda = 700 \text{ nm}$ abfällt. Ein solches Kristallplättchen erscheint im weißen Durchlicht gelbbraun gefärbt. Für die praktische Beobachtung (z.B. von Spuren) an unseren 200 μm starken Standardplättchen im Mikroskop ist daher bei Verwendung von Grün- oder Rotfiltern nur eine unwesentliche Lichtschwächung vorhanden.

Bemerkenswert ist, daß die Extinktionszentren bei Raumtemperatur keinerlei Extinktionsbanden im Sichtbaren aufweisen. Es scheint vielmehr ein fein abgestuftes Termschema in der verbotenen Zone des Bändermodells vorzuliegen, dessen Ursache auf Cd-Agglomerate verschiedener Größe (von Cd^{2+} -Clustern bis zu größeren CdCl_2 -Bereichen) zurückgeführt werden könnte. Da eine stärkere Anhebung des K-Wertes bei kleinen Wellenlängen schon bei Dotierungen von 600 ppm an festzustellen ist, kann man schließen, daß die kleinsten Cd-Agglomerate der kurzwelligen Extinktion zuzuordnen sind.

Die unterliegende Grautrübung dürfte sehr stark von der Vorgeschichte des untersuchten Kristalls abhängen. Eine Anhebung des gesamten Niveaus des Ausläufers bei gleicher CdCl_2 -Dotierung wird mit zunehmender Segregation, d.h. bei langsamerem Abkühlen nach dem Züchten oder Tempern, bzw. nach langer Lagerung eintreten. Dies lassen auch mittlerweile durchgeführte Vorversuche zur Messung der optischen Dichte an abgeschreckten $\text{AgCl}:\text{Cd}^{2+}$ -Kristallen von Wentz und Steinbrech erwarten (private Mitteilung).

III. Elektronenmikroskopische Untersuchungen

Trotz der wesentlich komplizierteren und zeitaufwendigen Präparationstechnik erlaubt die Elektronenmikroskopie aufgrund der bedeutend höheren Auflösung wesentlich detailliertere Aussagen über einige Kristalleigenschaften zu gewinnen als etwa die Lichtmikroskopie. Gleichzeitig kann man durch Elektronenbeugungsaufnahmen wichtige Rückschlüsse auf die kristallographische Struktur des Präparates ziehen.

Um die Auswirkungen der für unseren Detektor so wichtigen Cadmiumdotierung auf das AgCl-Gitter studieren zu können, war es zunächst nötig, im ersten Abschnitt reines Cadmiumchlorid zu untersuchen. Im zweiten Abschnitt folgen dann Untersuchungen an Cd-dotierten AgCl-Kristallen. Auf teilchenbestrahlte AgCl:Cd-Kristalle wird später in Kap. D.III. eingegangen.

Alle Aufnahmen wurden mit dem Elmiskop I der Firma Siemens bei einer Strahlspannung von 80 kV gemacht; das entspricht einer DeBroglie-Wellenlänge der Elektronen von $\lambda = 0,0418 \text{ \AA}$.

1. Elektronenbeschuß von kristallinen CdCl_2 -Fällungen

Reines Cadmiumchlorid ist sehr hygroskopisch. Es baut je nach Temperatur stöchiometrisch definierte Mengen von Kristallwasser ins Gitter ein. Aufgrund von Untersuchungen des Bodensatzes wäßriger CdCl_2 -Lösungen erhält man 3 verschiedene CdCl_2 -Hydrate (58):

$T < -5,6 \text{ } ^\circ\text{C}$	$\text{CdCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
$T = -5,6 \dots +33,8 \text{ } ^\circ\text{C}$	$\text{CdCl}_2 \cdot 2,5\text{H}_2\text{O}$
$T = 33,8 \dots 174 \text{ } ^\circ\text{C}$	$\text{CdCl}_2 \cdot 1\text{H}_2\text{O}$
$T > 174 \text{ } ^\circ\text{C}$	CdCl_2

Die Umwandlungen der Hydrate, insbesondere bei der Abkühlung, erfolgen zum Teil recht langsam, so daß zeitweise instabile

Zwischenformen bestehen können. Wasserfreies CdCl_2 gehört dem trigonalen Kristallsystem an mit der Raumgruppe $R\bar{3}m$. Die Reflexlagen und die Indizierung sind genau bestimmt (59). Über die Struktur der CdCl_2 -Hydrate liegt aufgrund der ASTM-Kartei lediglich eine Reflexmessung vor (60). Die Substanz wird dort mit $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ bezeichnet und dem monoklinen System zugeordnet; Angaben über Raumgruppe, Gitterkonstanten und Indizierung fehlen. Nach röntgenographischen Messungen von Wentz (50) bei Raumtemperatur dürfte es sich hier um das Hydrat $\text{CdCl}_2 \cdot 2,5\text{H}_2\text{O}$ handeln. In Tabelle 1 sind alle bekannten Reflexe mit relativen Intensitäten $I/I_{\text{max}} > 20 \%$ für $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, CdCl_2 und auch von Cadmium (61) gemeinsam in der Reihenfolge abnehmender d-Werte (Netzebenenabstände) aufgeführt. Die Tabelle enthält noch eine Spalte der Durchmesser D der zugehörigen Debye-Scherrer-Ringe (als Beispiel nur für Abb. 21b genau geltend) und die Millerindices - soweit bekannt. In den "Abb."-Spalten sind die dort gefundenen Reflexe durch Intensitätsbuchstaben angezeigt (s = stark, m = mittel, d = dünn, dd = sehr schwach).

Für die elektronenmikroskopischen Präparate wurde $\text{CdCl}_2 \cdot 2,5\text{H}_2\text{O}$ p.a. der Firma Riedel de Haen, Seelze, verwendet. Tröpfchen der wässrigen Lösung dieser Substanz übertrugen wir auf mit Kollodium befilmte Präparatträgerschichten und ließen sie dann bei Raumtemperatur eintrocknen. Im Elektronenmikroskop beobachtet man im allgemeinen dicke Schichten von feinkörnigem Cadmiumchlorid (Präparat 1), die bei der Betrachtung mit geringem Strahlstrom (keine Präparaterwärmung) im Übersichtsbeugungsdiagramm die Reflexe des Hydrates zeigen. Heizt man im Elektronenstrahl diese Schicht auf, so zeigt sich eine sehr disperse Struktur gemäß Abb. 21a. Es sind jetzt nur noch Reflexe des wasserfreien CdCl_2 im Feinbereichsbeugungsdiagramm (FBB) (Abb. 21b) zu erkennen. Bei noch stärkerem Elektronenbeschuss treten Reflexe des Cadmiums auf, die neben einigen meist schwächer gewordenen CdCl_2 -Ringen zu sehen sind (Abb. 21c).

d [Å]	D [mm]	CdCl ₂ ·H ₂ O		CdCl ₂		Cd		Präparat 1		Präparat 2		Präparat 3	
		I/I _m	hkl	I/I _m	hkl (hex)	I/I _m	hkl (hex)	Abb. 21b	21c	Abb. 22b	22d	Abb. 23b	23d
7,3	5,45	63											
5,9	6,75	100											
5,85	6,8			100	003			m	dd	s	s	s	(s)
4,65	8,56	31								s	s		(s)
3,63	11,0	44											
3,37	11,8	50									m		
3,27	12,2			70	101			s	s				
2,99	13,3	25											
2,81	13,8					65	002						s
2,65	15,0			90	104			s	dd	m	d	m	
2,62	15,2	100											
2,58	15,4					32	100		s	s	dd	s	
2,42	16,4	38						dd					
2,41	16,5			30	015				s		s		s
2,35	16,9	31				100	101						
2,08	19,1	23							dd				
2,00	19,9			20	107					d	m		
1,97	20,2	50											
1,92	20,7			30	101								
1,90	20,9					32	102		s				
1,88	21,2	44						m	s				(s)
1,83	21,7			55	113				m				
1,52	26,2					26	103		m		d		

Tabelle 1: Auswertung der Cadmiumchlorid-FBB-Diagramme

In Niederschlägen stark verdünnter Lösungen findet man einzelne Einkristallplättchen von runder (Präparat 2, Abb. 22) oder leicht hexagonaler (Präparat 3, Abb. 23), vereinzelt auch stäbchenförmiger Gestalt. Das Beugungsbild von Abb. 22a ist ein Punktdiagramm (Abb. 22b), dessen Reflexe dem Hydrat zuzuordnen sind. Bei stärkerer Elektronenbestrahlung "zer-setzt" sich das Einkristallplättchen unter Beibehaltung der äußeren Gestalt (Abb. 22c). Es treten nun nebeneinander Ringreflexe des Hydrats, des wasserfreien CdCl₂ und des hexagonalen Cadmiums (Raumgruppe R $\bar{3}$ m) auf (Abb. 22d). Daneben finden sich noch schwache unbekannte Ringe, die dem "echten" Hydrat CdCl₂·1H₂O zugeordnet werden könnten.

Wegen des Fehlens genauer röntgenographischer Vermessung der beiden in Frage kommenden Hydrate ist die exakte Reflex-Auswertung nicht vollständig möglich. Auch liegen einige d-Werte von CdCl₂·H₂O in (60) so nahe an den d-Werten des CdCl₂ gemäß (59), daß es sich u.U. bei den Reflexen in der ASTM-Karte (60) um ein Mischdiagramm aus CdCl₂·2,5H₂O, CdCl₂·1H₂O und CdCl₂ handeln könnte.

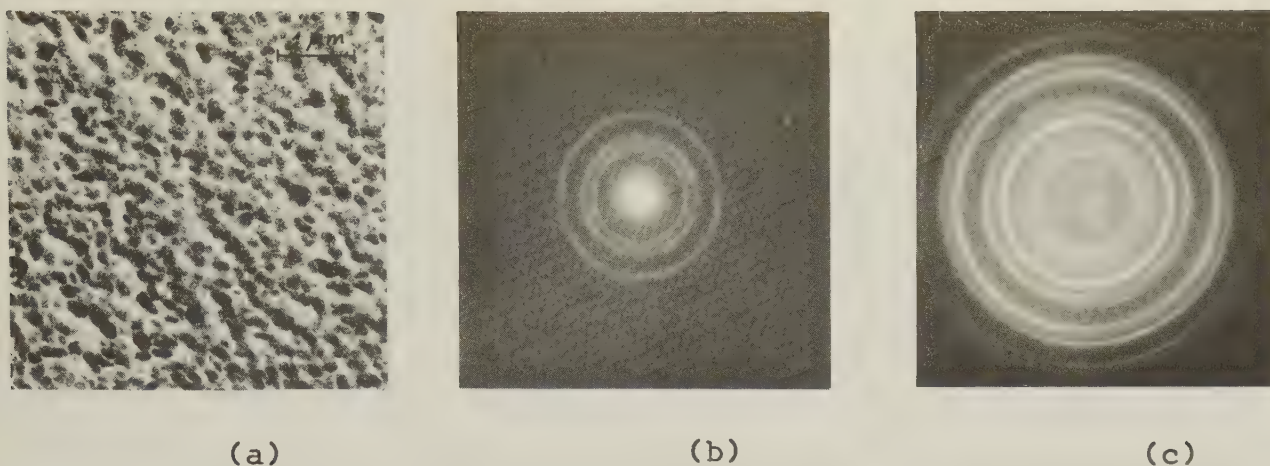


Abb. 21. Feinkörnige Cadmiumchlorid-Fällung
 a) Fällung nach Elektronenbestrahlung
 b) FBB-Diagramm von (a), CdCl_2 -Reflexe
 c) Wie (b) nach längerer Elektronenbestrahlung, Reflexe von $\text{CdCl}_2 + \text{Cd}$

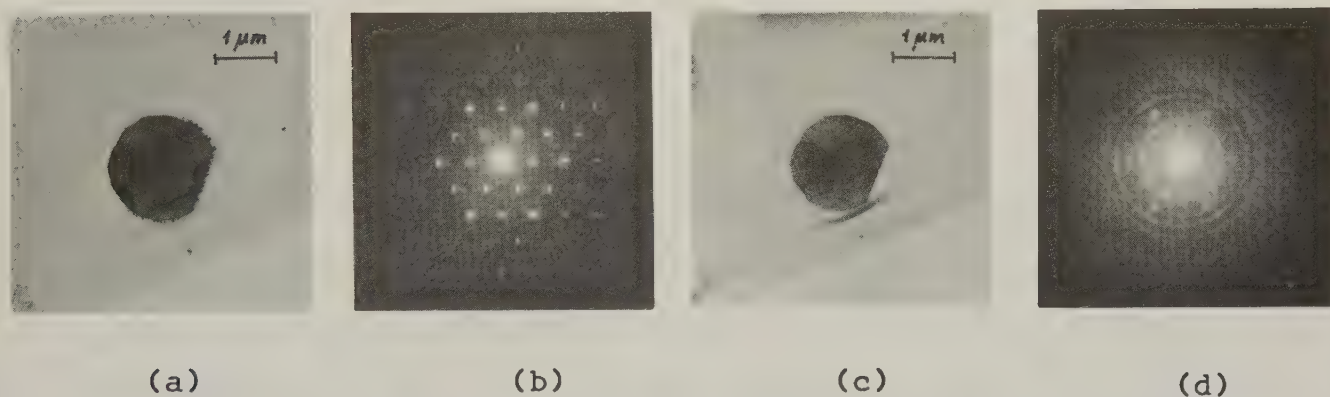


Abb. 22. Einkristallplättchen einer Cadmiumchlorid-Fällung
 a) Plättchen nur wenig strahlengeschädigt
 b) FBB-Diagramm von (a), $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ -Reflexe
 c) Wie (a) nach längerer Elektronenbestrahlung
 d) FBB-Diagramm von (c), Reflexe von $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O} + \text{CdCl}_2 + \text{Cd}$

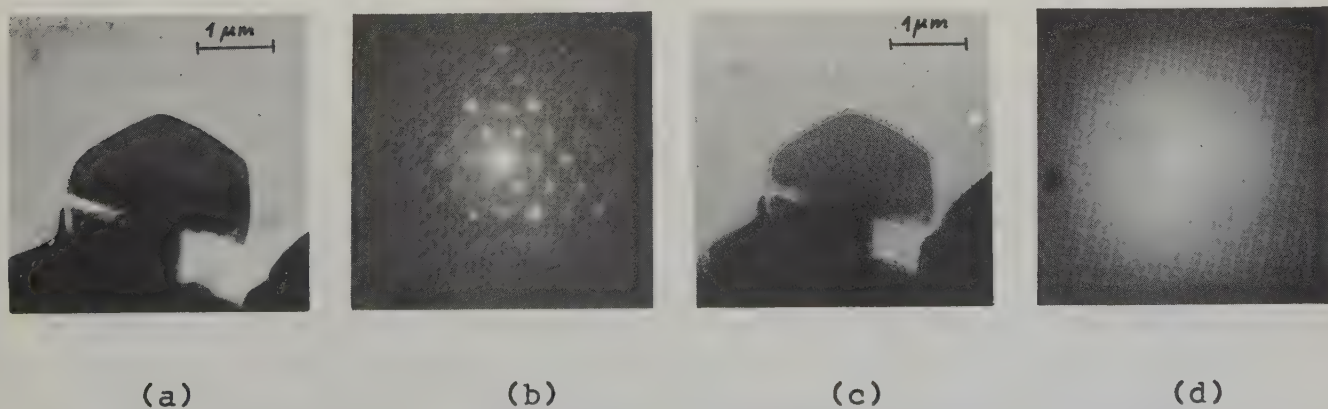


Abb. 23. Einkristallplättchen einer Cadmiumchlorid-Fällung
 a) Plättchen praktisch ungeschädigt
 b) FBB-Diagramm von (a), $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ -Reflexe
 c) Wie (a) nach längerer Elektronenbestrahlung
 d) FBB-Diagramm von (c), Reflexe von $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O} + \text{CdCl}_2 + \text{Cd}$, halbamorph

Das Präparat 3 (Abb. 23) zeigt ähnliche Eigenschaften bei der Elektronenbestrahlung wie das Präparat 2 (Abb. 22). Wegen der wesentlich feineren Körnung des stark bestrahlten Präparats 3 (Abb. 23c) gegenüber der des Präparats 2 (Abb. 22c) erhält man jetzt ein etwas verwaschenes Ring-Diagramm (Übergang zu elektronenstrahlamorpher Struktur, Abb. 23d).

Die Beobachtungen an CdCl_2 -Fällungen zeigen, daß bei Erwärmung im Elektronenstrahl - wie zu erwarten war - eine Umsetzung $\text{CdCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CdCl}_2$ stattfindet. Die auftretenden Cd-Reflexe beweisen, daß Elektronen-Bestrahlung eine Reduktion des CdCl_2 zu Cadmium bewirkt. Ähnliche Feststellungen machte auch Suzuki (62, 63, 64) an Rauch von CdBr_2 und CdCl_2 . Ein eindeutiger Nachweis der Reduktion des Cd^{2+} wurde von Suzuki allerdings nur für CdBr_2 erbracht (63).

2. Beobachtungen an AgCl: Cd-Ultramikrotomschnitten

a) Herstellung der Kristallpräparate

Über die Anwendung der Ultramikrotomie für die Herstellung von im Elektronenmikroskop (bei 80 kV!) durchstrahlbaren großen Ionenkristallen und von Silberhalogenidkriställchen in photographischen Emulsionen haben wir bereits früher berichtet (65, 66, 67, 68, 69). Im vorliegenden Abschnitt wird insbesondere auf die Wirkung der Licht- und Elektronenbestrahlung auf Ultramikrotomschnitte von Cd-dotierten AgCl-Kristallen eingegangen. Als Kristallproben wurden nach Abschnitt B.IV. gezüchtete AgCl: Cd-Plättchen verwendet, die nach Abtrennung von der Quarzunterlage in Streifen geschnitten und gemäß (65, 68) in UHU-plus eingebettet wurden. Das Einbettungsmittel wurde im Dünnschneide-Bereich von Hand weggeschnitten. Mit Hilfe des Leitz-Ultramikrotoms nach Fernández-Morán war es dann möglich, durchstrahlbare Kristall-Querschnitte von etwa 300-500 Å Dicke herzustellen. Die Dünnschnitte wurden von der Wasseroberfläche des Auffangtroges mit Präparat-Trägernetzchen aufgefischt und - teilweise erst

nach starker Belichtung - im Elektronenmikroskop betrachtet. Wegen des relativ niedrigen Schmelzpunktes und der hohen Elektronen-Empfindlichkeit des AgCl mußten die Präparate stets mittels einer Kühlvorrichtung durch flüssigen Stickstoff auf Temperaturen von $-120 \dots -150^{\circ}\text{C}$ gehalten werden. Die dabei auftretenden Schwierigkeiten sind bereits in früheren Arbeiten näher erläutert worden (65, 66, 68).

In Tabelle 2 ist die Auswertung der Beugungsdiagramme analog Tabelle 1 zusammengestellt. Die Daten der im kubischen System (Raumgruppe $Fm3m$) kristallisierenden Substanzen AgCl und Ag sind aus (70) und (71) entnommen. Der erste d-Wert gehört zu einem Ring-System, das bei gekühlten Proben in unserem Elektronenmikroskop sehr oft auftritt. Wir haben es bereits in (66) einer Kondensatschicht zugeordnet, die im Elektronenmikroskop entsteht. In den vorliegenden Diagrammen ist der angeführte Reflex als innerster Ring auch manchmal zu erkennen.

b) Ergebnisse und Diskussion

Es konnte schon gezeigt werden (66, 68), daß eine Reduktion des AgCl zu Ag bei zunehmender Elektronenbelichtung stattfindet. Bei Untersuchungen von dotiertem oder undotiertem AgCl mußte allerdings darauf geachtet werden, daß der Strahlstrom nicht zu rasch erhöht wurde. Es erfolgte sonst, bedingt durch den Wärmestau im Präparat, leicht ein Aufschmelzen des Kristalls und eine Koagulation zu AgCl-Schmelzperlen. Dieser Vorgang könnte dem ungeübten Beobachter einen Reduktionseffekt vortäuschen. Eine echte Umwandlung von AgCl zu Ag wird dann erreicht, wenn der AgCl-Kristall längere Zeit dem Elektronenstrahl bei relativ niedriger Intensität ausgesetzt wird. Es ist zu vermuten, daß gerade die Strahlintensität erreicht werden muß, die eine für die erforderliche Ionenwanderung nötige Temperatur im Kristall erzeugt. Aus den Energieverlustberechnungen von Elektronen in AgCl im Abschnitt D.II.4. ersieht man, daß die 80-kV-Elektronen einen

Energiebetrag von etwa 4,5...5 eV pro 10 Å AgCl-Schichtdicke verlieren, was also bei weitem ausreicht, um eine Art Elektronen-"Photo"lyse, d.h. Silberabscheidung, hervorzurufen. In (68) haben wir bereits gezeigt, daß die Ag-Bildung durch Elektronenbestrahlung in undotierten AgCl-Folien sehr fein dispers und homogen über die gesamte bestrahlte Kristallfläche erfolgt. Lediglich Korngrenzen und durch das Diamantmesser des Mikrotoms verursachte Kristallbereichsverschiebungen zeigen dort eine leicht bevorzugte Silberabscheidung.

Es sollte nun untersucht werden, ob bei einer Cd-Dotierung besondere Strukturen und Reduktionseigenschaften im Elektronenmikroskop sichtbar werden. Allgemein ist festzustellen, daß mit zunehmender Cd-Dotierung die Elektronenempfindlichkeit wesentlich gesteigert wird, so daß es recht schwierig ist, Aufnahmen von gut erhaltenen Kristallen zu bekommen. Bis zu einer Dotierung von 0,3 % Cd konnte bei praktisch nicht vom Elektronenstrahl geschädigten Proben zunächst keine Besonderheit gegenüber undotiertem AgCl festgestellt werden; lediglich eine stärkere Ätzung durch das Wasser im Ultramikrotom-Auffangtrog war häufig, jedoch nicht immer, zu beobachten (kristallographisch orientierte Löcher - "etch pits"). Leicht wasserlösliche CdCl₂-Agglomerate sind offensichtlich stärkere Lochkeime als etwa Versetzungen und grobe mechanische Schäden durch das Mikrotommesser. Abb. 24 (mit 0,3 % Cd-Zusatz) hat das gleiche Aussehen wie die schon früher publizierten Aufnahmen (65, 66, 68) undotierter Kristalle. Die auffallenden Extinktionskonturen sind ein Beweis für das Vorliegen ungestörter Einkristallbereiche. Bei AgCl-Schnitten mit 1 % Cd-Zusatz (Abb. 25) sind allerdings oft unscharf umrandete Punkte zu erkennen, die bei längerer Bestrahlung zu flächenhaften Bereichen anwachsen. Solche Bereiche findet man auch bei Korngrenzen und Folienrissen. Abb. 26a zeigt einen stark vergrößerten Ausschnitt eines mit 1 % Cd dotierten Kristalls, der diese diffusen Punktbereiche

besser erkennen läßt. Das zugehörige Beugungsdiagramm (Abb. 26b) entspricht - wie es auch das quadratische "Loch" vermuten läßt - einem mit der Würfelebene senkrecht zum Elektronenstrahl orientierten Kristallbereich, in dem bereits die {200}- und {220}-Ringreflexe des metallischen Silbers stückweise erkennbar sind (epitaktisches Ag-Wachstum). Abb. 27a,b zeigt die fortschreitende Reduktion einer AgCl-Folie mit 1 % Cd; die wachsenden Punktgebilde stellen in der sich zersetzenden Folie offensichtlich besondere Reduktionskeimzentren dar.

In Abb. 28a ist das nur bei höherer Cd-Dotierung (1 %) häufig zu beobachtende typische flächenhafte Wachsen des reduzierten Bereiches zu sehen. Das Beugungsdiagramm (Abb. 28b), das auch noch die Umgebung erfaßt, zeigt Ag-Ringe in einer noch teilweise erhaltenen AgCl-Matrix in {111}-Lage. Nach längerer Elektronenbestrahlung erhält man vom gleichen Präparat große zusammenhängende, sehr fein dispers aufgebaute Flächengebilde, die sich zum Schluß von der körnig gewordenen AgCl-Matrix lösen und im Strahl recht stabil sind (Abb. 29a). Sie ähneln den halb-reduzierten CdCl_2 -Kristallen von Abb. 22c und 23c. Das Beugungsdiagramm Abb. 29b des Flächengebildes zeigt nebeneinander AgCl- und Ag-Ringreflexe. Der Einkristallcharakter des AgCl ist also zerstört, aber die Reduktion zu Silber ist nur z.T. erfolgt. CdCl_2 - oder Cd-Reflexe werden - wie auch nach den röntgenographischen Ergebnissen von Wentz (50) zu erwarten war - bei einer 1 %igen Cd-Dotierung niemals beobachtet.

Eine Untersuchung von AgCl-Kristallen mit 0,5 % Cd (Abb. 30,31) zeigte auch wie bei 1 %iger Cd-Dotierung (Abb. 25) zahlreiche unscharf umrandete Punkte, die wiederum als CdCl_2 -Agglomerate gedeutet werden müssen. Hier wurden bei längerer Elektronenbestrahlung allerdings kreisrund wachsende Reduktionszonen um diese Punkte beobachtet im Gegensatz zu den regellos geformten Flächengebilden der Abb. 25. Die auffallenden länglichen

Löcher in Abb. 30, 31 und in späteren Abbildungen sind durch Ätzen vergrößerte Risse (Messerartefakte).

d [Å]	D [mm]	AgCl		Ag		Abbildungen				
		I/I _m	hkl	I/I _m	hkl	26b	28b	29b	32b	33b
3,74	9,8	-	-	-	-	d	m			
3,203	11,4	49	111					d	s	s
2,774	13,3	100	200			s		m	s	m
2,359	15,5			100	111		s	s	d	s
2,044	17,9			40	200	d			dd	dd
1,962	18,7	50	220			s	s	s	s	d
1,673	21,9	15	311							dd
1,602	22,9	15	222					d	s	dd
1,445	25,4			25	220	d	m	m	dd	d
1,387	26,5	6	400			s			m	dd
1,273	28,8	3	331							
1,241	29,6	11	420			s				
1,231	29,8			26	311	dd	d	m		d
1,180	31,1			12	222			d		
1,133	32,4	7	422				m	d		dd
1,068	34,3	3	511							
1,022	35,8			4	400					

Tabelle 2: Auswertung der AgCl:Cd-FBB-Diagramme

Die Abb. 32 bis 35 sind Beispiele für sehr stark mit Licht von $\lambda = 417$ nm gleichlang bestrahlte Ultramikrotomschnitte. Abb. 32a zeigt AgCl mit 1 % Cd-Zusatz. Bei diesem gut erhaltenen Präparat sind außer dem durch die Belichtung entstandenen "print-out"-Silber (schwarze, scharf abgegrenzte Punkte) keine Besonderheiten zu erkennen. Das zugehörige Beugungsdiagramm Abb. 32b zeigt eine {110}-Einkristallage mit angedeuteten Ag-Ringen (leichte Textur), die offensichtlich von dem photolytisch abgeschiedenen Silber herrühren. Bei leichter Elektronenbestrahlung beginnt sich die Folie zu "zersetzen" (Abb. 33a); bei stärkerer Elektronenbestrahlung entstehen dann die schon oben erwähnten flächenhaften Reduktionsstrukturen (Abb. 34). Das Beugungsbild Abb. 33b, das einem Stadium zwischen Abb. 33a und Abb. 34 zuzuordnen ist und nebeneinander AgCl- und Ag-Reflexe erkennen läßt, entspricht wieder einem teilweise zerstörten Einkristall.

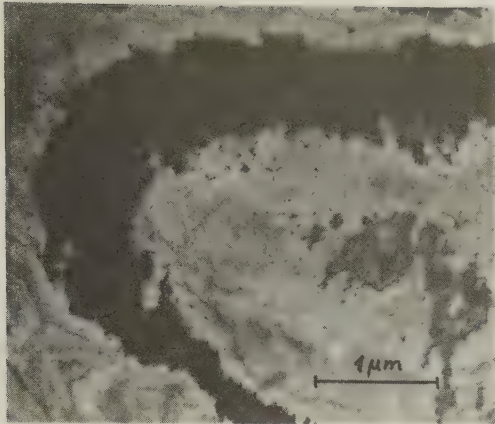


Abb. 24. AgCl + 0,3 % Cd
kaum el.-geschädigt,
Einzelversetzungen

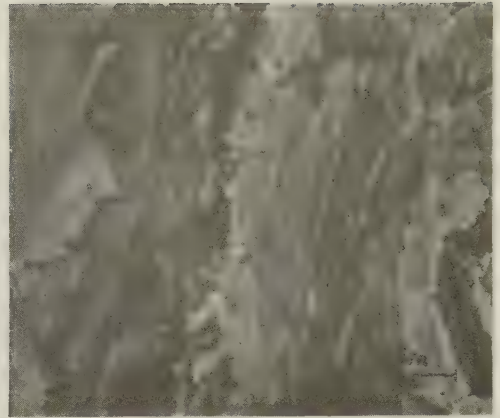
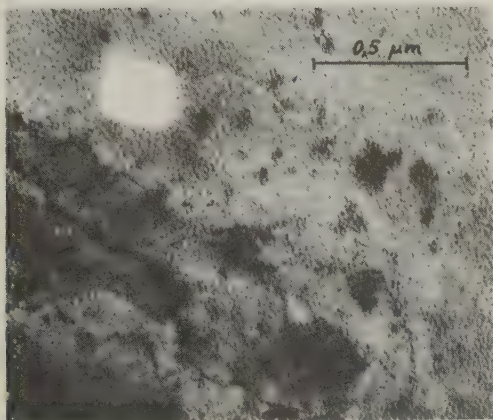
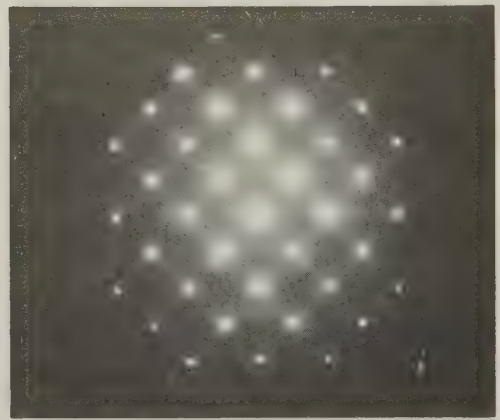


Abb. 25. AgCl + 1 % Cd
kaum el.-geschädigt,
diffuse Punktgebilde



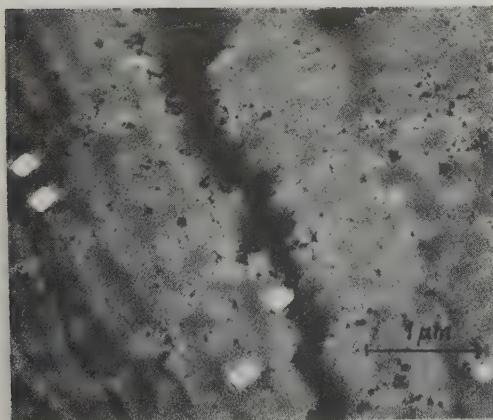
(a)

Abb. 26. AgCl + 1 % Cd
kaum el.-geschädigt,
diffuse Punktgebilde



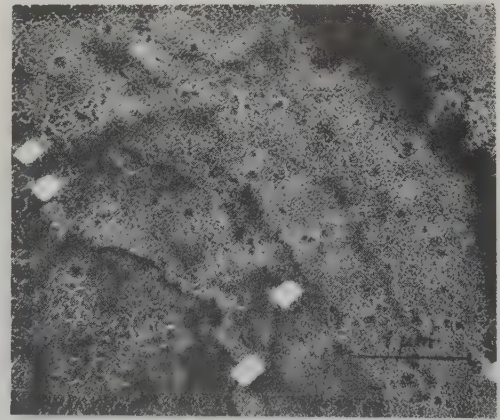
(b)

FFB-Diagramm von (a) in {100},
Reflexe von AgCl + sehr
wenig Ag



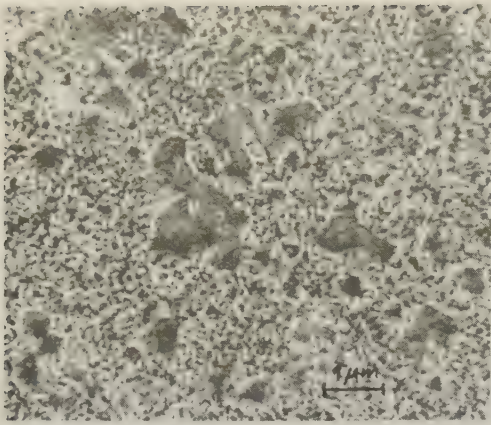
(a)

Abb. 27. AgCl + 1 % Cd
el.-bestrahlt,
Reduktionsinseln



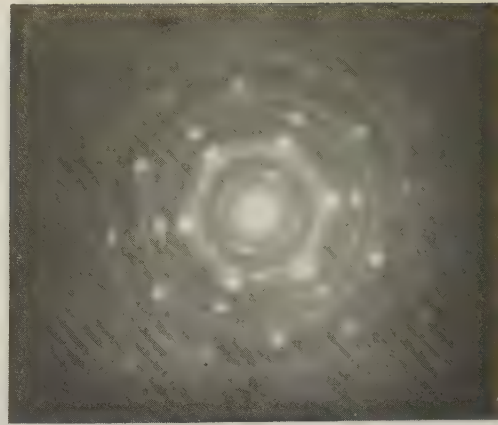
(b)

Stelle von (a) stärker el.-
bestrahlt,
Reduktionsinseln



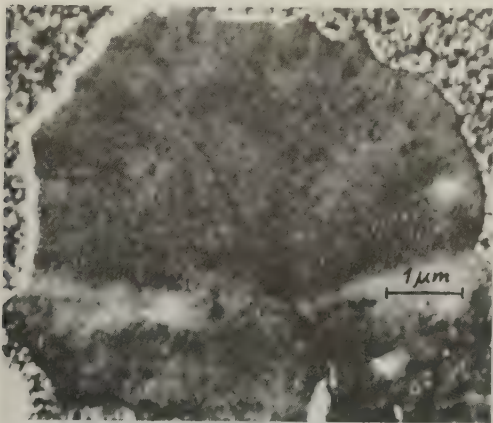
(a)

Abb. 28. AgCl + 1 % Cd
stark el.-bestrahlt,
große Reduktions-
bereiche



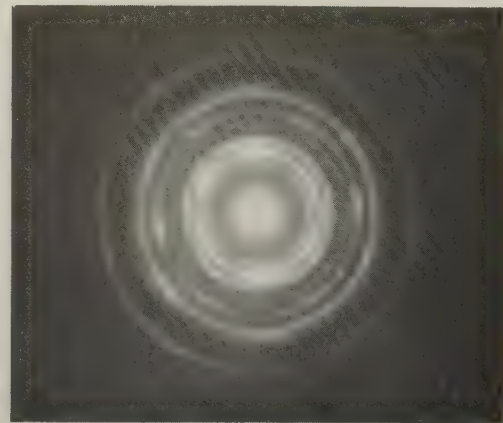
(b)

FBB-Diagramm von (a)
Reflexe von AgCl + Ag



(a)

Abb. 29. AgCl + 1 % Cd
sehr stark el.-be-
strahlt, riesiger
Reduktionsbereich



(b)

FBB-Diagramm des Reduk-
tionsbereiches von (a),
Reflexe von AgCl + Ag

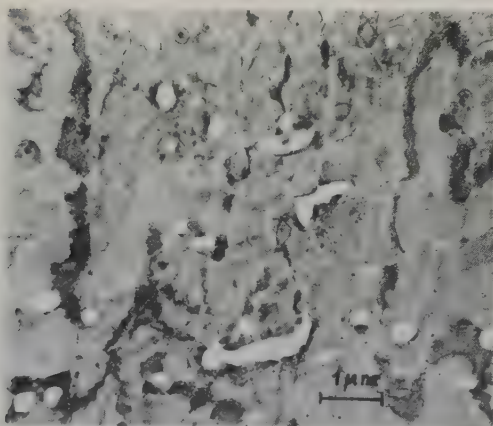


Abb. 30. AgCl + 0,5 % Cd
el.-bestrahlt, Reduk-
tionshöfe um Punkt-
gebilde, Ätzungen auch
an Messerartefakten

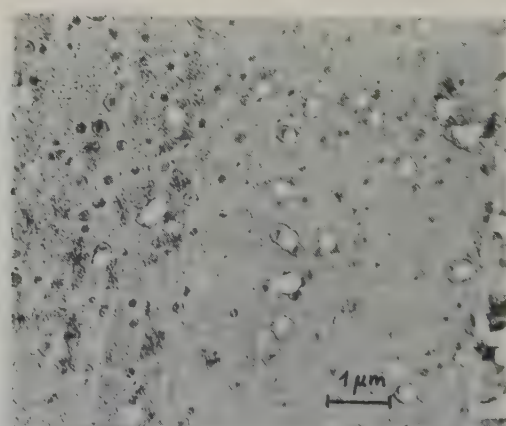
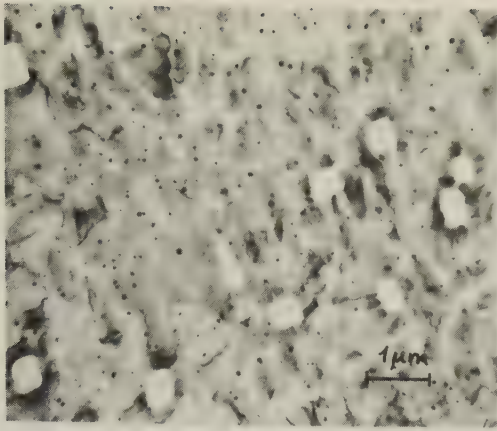
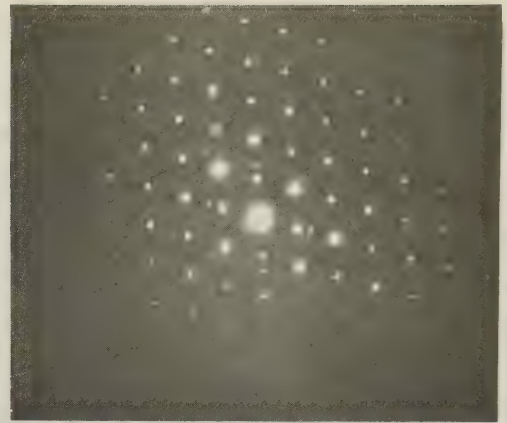


Abb. 31. AgCl + 0,5 % Cd
ähnlich Abb. 30, aber
stärker el.-bestrahlt



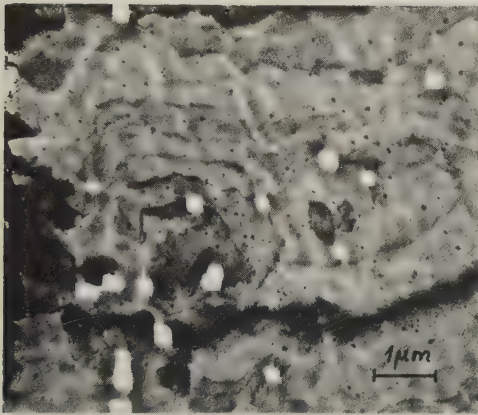
(a)

Abb. 32. AgCl + 1 % Cd
mit photolytischem Ag



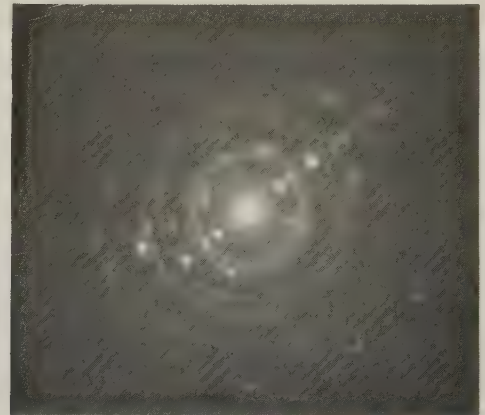
(b)

FBB-Diagramm von (a) in {110},
Reflexe von AgCl + wenig
Photo-Ag



(a)

Abb. 33. Wie Abb. 32, aber
el.-bestrahlt



(b)

FBB-Diagramm von stärker be-
strahltem (a), Reflexe von
AgCl + Ag

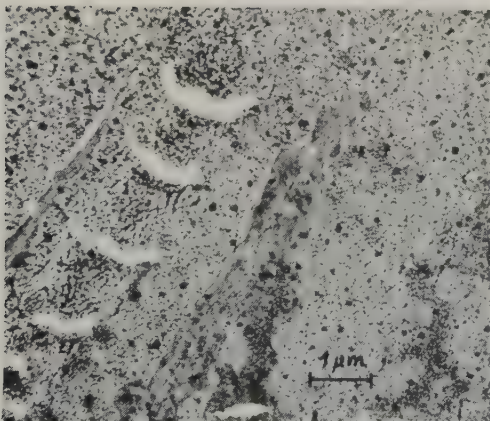


Abb. 34. Wie Abb. 32, 33, aber
sehr stark el.-bestrahlt,
nebeneinander: photolyt.
Ag, disperse reduzierte
AgCl-Matrix, große Reduk-
tionsbereiche längs
mech. Störungen

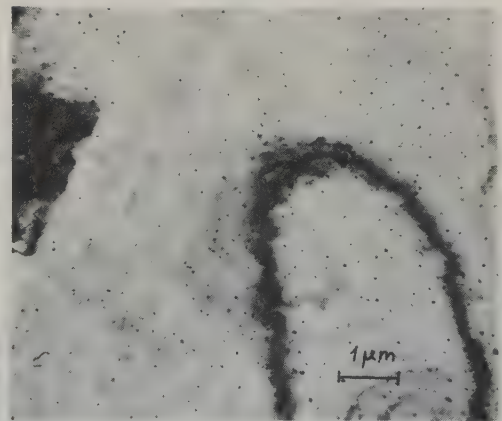


Abb. 35. AgCl + 0,03 % Cd
mit photolyt. Ag,
insbesondere an
mech. Gitter-
störungen

Bemerkenswert ist, daß das photolytisch gebildete Silber unter dem Elektronenstrahl nicht weiter wächst; das durch Elektroneneinwirkung entstandene Silber bildet sich vielmehr unabhängig neben dem photolytischen Silber (Abb. 34). Die Reduktionsmechanismen laufen offensichtlich auf verschiedene Weise ab. Dieses Phänomen wurde nur bei Cd-dotierten AgCl-Kristallen beobachtet. Zum Vergleich ist in Abb. 35 noch ein AgCl-Dünnschnitt mit 0,03 % Cd-Zusatz wiedergegeben, der genauso lang wie der Kristall in Abb. 32 belichtet worden war. Man stellt fest, daß das photolytische Silber bei offensichtlich gleicher Ag-Menge feiner verteilt ist. Außerdem ist bei dieser niedrigen Cd-Dotierung auch eine "Dekoration" der mechanischen Gitterstörungen (geradlinige Ag-Punktreihen an den Grenzen abgeglittener Bereiche, Ag-Punkte an Versetzungen) zu beobachten.

Die Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen an AgCl:Cd-Kristallen bestärken die Aussagen am Schluß der Kap. I und II und die röntgenographischen Ergebnisse von Wentz (50). Die Mischbarkeitsgrenze, die bei einigen hundert ppm Cd vermutet wird, leitet keine echte Phasenabscheidung des CdCl_2 ein. An den Mischkristallbereich scheint sich bei zunehmendem Cd-Gehalt ein großes Übergangsgebiet, beginnend mit Cd-Agglomeraten (Cluster, Nahordnungsbereichen) bis hin zu einer möglichen Überstruktur anzuschließen, wie sie auch beim System NaCl- CdCl_2 festgestellt wurde (72). Erst ab etwa 25 % CdCl_2 -Gehalt treten bei Raumtemperatur röntgenographisch CdCl_2 -Reflexe auf (50), was als beginnende CdCl_2 -Ausscheidung zu deuten ist. Die Untersuchungen des Systems AgCl- CdCl_2 von Wagner und Hantelmann (73) und von Wentz (50) können über den Übergangsbereich wenig aussagen, werden aber z.Z. weiterverfolgt (Wentz, private Mitteilung). Die ab 0,5...1 % Cd-Zusatz im Elektronenmikroskop häufig sichtbaren diffusen Punktgebilde müssen als Cd-Agglomerate gedeutet werden. Sie sind als Zentren für Ag-Abscheidung im Elektronenstrahl gegenüber z.B. mechanischen Kristall-Defekten stark bevorzugt.

D. AgCl-KRISTALLE ALS TEILCHENSPURDETEKTOREN

I. Prüfung dotierter AgCl-Kristalle auf Detektor-Eignung

Um die Verwendbarkeit der AgCl-Kristalle als Detektor für Spuren ionisierender Teilchen zu prüfen, haben wir zunächst in einem umfangreichen Programm nach dem in Kapitel B.IV. beschriebenen Verfahren unter etwa 400 Torr Stickstoffatmosphäre (bei Mn-Dotierung auch Chlorzugabe!) AgCl-Plättchen gezüchtet, die wir mit verschiedenen Elementen dotiert hatten. Jedes Element wurde - soweit möglich - als Chlorid in p.a.-Qualität in wässriger oder salzsaurer Lösung in den Konzentrationen 0, 50, 100, 300, 600, 1000 und 3000 Mol-ppm dem AgCl-Pulver beigegeben. Neben diesen Standard-Serien wurden in den wichtigen Fällen der Abschnitte 2, 3, 4 erweiterte und spezielle Dotierungen hergestellt.

1. Strahlenquellen und Dekorationsverfahren

Fast alle Kristalle der Testserien wurden mit α -Teilchen einer Thoriumquelle beschossen. Die in der Thorium-Zerfallsreihe am häufigsten auftretenden Energien sind nach (74):

23,5 %	6,05 MeV/ α	aus	$^{212}_{83}\text{Bi} \rightarrow ^{208}_{81}\text{Tl}$
9,1 %	6,09 MeV/ α	aus	$^{212}_{83}\text{Bi} \rightarrow ^{208}_{81}\text{Tl}$
66,3 %	8,78 MeV/ α	aus	$^{212}_{84}\text{Po} \rightarrow ^{208}_{82}\text{Pb}$

In vielen Fällen wurde auch eine Californium-Quelle benutzt. ^{252}Cf zerfällt durch α -Strahlung und durch spontane Spaltung. Auf 1 Spaltprodukt kommen nach (74) etwa 16 α -Teilchen. Die fast ausschließlich auftretenden α -Energien sind nach (74):

15,5 %	6,07 MeV/ α	aus	$^{252}_{98}\text{Cf} \rightarrow ^{248}_{96}\text{Cm}$
84,5 %	6,11 MeV/ α	aus	$^{252}_{98}\text{Cf} \rightarrow ^{248}_{96}\text{Cm}$

Das Endprodukt ^{248}Cm ist nur ein äußerst schwacher α -Strahler.

Das Spektrum der Spaltfragmente hat nach (75,76) Maxima

bei $E_s = 79,4 \text{ MeV}$, $m_s = 141,9 \text{ u}$
(schwere Gruppe, rel. Intensität = 75 %)

und bei $E_l = 103,8 \text{ MeV}$, $m_l = 106,0 \text{ u}$
(leichte Gruppe, rel. Intensität = 100 %)

Der Beschuß mit Teilchen von Beschleunigern usw. wird später erläutert. Falls bei den Testergebnissen nichts anderes im Hinblick auf die Teilchen angeführt ist, handelt es sich stets um Th- α -Teilchen.

Die Dekoration (Sichtbarmachung) der Spuren erfolgte zunächst nach dem Verfahren von Haynes und Shokley (9). Hierbei werden an der Oberfläche eines AgCl-Kristalls durch einen UV-Lichtblitz (Wellenlänge unterhalb der Absorptionskante!) Elektronen erzeugt, die mittels elektrischem Feldimpuls in das Kristallinnere gezogen werden, wo sie an Fallen (z.B. an den latenten Spuren) eingefangen werden, um dort zur Bildung photolytischen Silbers beizutragen. Über das Verfahren, mit dem die Versuche unter Abs. 5 ausgeführt worden sind, wurde im Detail schon berichtet (11, 12, 13, 14, 15, 77, 78). Später wurde durch gezielte Experimente bestätigt, daß in den meisten Fällen eine Dekoration auch mit ungepulstem Licht und ohne Feld möglich ist (77, 78, 79), wenn man zur Dekoration Licht von $\lambda = 405 \dots 410 \text{ nm}$ benutzt (Reintransmission $\theta_{0,02} \approx 80 \%$ bei undotiertem AgCl gemäß Abb. 20).

Unter Verwendung dieser einfachen Dekorationsmethode gelingt es uns heute im allgemeinen, die 0,2 mm dicken Standardplättchen mit Cd- und (Cd+Pb)-Dotierung durchzudekorieren.

2. Ergebnisse bei Cd-dotierten AgCl-Kristallen

Unter allen von uns untersuchten Dotierungselementen fanden wir Cadmium als den besten "Spurenbildner" heraus. Der Cd-Einbau ins AgCl-Gitter und die damit zusammenhängenden

Probleme wurden im Abschnitt C bereits näher untersucht. Bei relativ geringem print-out-Untergrund lassen sich - je nach Cd-Konzentration - verschiedene Teilchen nachweisen. Dabei spielt der spezifische Energieverlust $-dE/dx$ bzw. die spezifische Ionisation $-dJ/dx$ der Teilchen eine wichtige Rolle. Wir fanden, daß sich etwa ab 400 ppm Cd Spaltprodukte von ^{235}U und ^{252}Cf , ab 3000 ppm α -Teilchen von 6-8 MeV und ab 5000 ppm Protonen von 4 MeV und α -Teilchen von 100 MeV zu 100 % nachweisen, also deren Spuren dekorieren lassen. Der Übergangsbereich von 0-100 % Nachweiswahrscheinlichkeit ist relativ breit. Er kann durch verbesserte Züchtbedingungen schmaler gemacht werden. Es ist jedoch bereits heute leicht möglich, bei 600 ppm Cd-Dotierung die Spaltprodukte des ^{252}Cf zu dekorieren, ohne daß hierbei gleichzeitig auch die weit größere Zahl der begleitenden α -Teilchen registriert wird. An "Druckstellen" (durch einen harten Gegenstand bewußt erzeugte plastische Verformungszonen) können α -Teilchen schon bei niedrigeren Cd-Dotierungen dekoriert werden. Über Details der AgCl:Cd-Detektoren haben wir an anderer Stelle berichtet (14, 15, 16, 17, 80).

In einer besonderen Untersuchung von Henig (77, 78) wurde das Temperaturverhalten des AgCl:Cd-Detektors im Intervall von -100 bis $+100$ °C ermittelt, und zwar im Hinblick auf den störenden print-out-Untergrund und auf die Spurenausbildung von Th- α -Teilchen. Bei den mit 1000 bis 5000 ppm Cd dotierten AgCl-Kristallen wurden für beide Kriterien Maxima gefunden:

Das print-out-Maximum liegt bei etwa -40 bis -30 °C, optimale Spuren erhält man bei $+20$ bis $+40$ °C je nach Cd-Konzentration. Bei -100 und $+100$ °C wird weder print-out erzeugt noch werden Spuren dekoriert; Druckeinwirkung verändert dieses Ergebnis fast nicht.

3. Ergebnisse bei mit Cd+Pb(+Au+Cu) dotierten AgCl-Kristallen

Es zeigte sich, daß sich Blei ab etwa 100 ppm Zusatz im AgCl auszuscheiden beginnt. Pb-Dotierung verfeinert und vermindert schon bei wenigen ppm den print-out-Untergrund. Spuren werden bei reiner Pb-Dotierung im allgemeinen nicht dekoriert. Wir versuchten im Rahmen eines umfangreichen Programms, das Spurenbild von ^{252}Cf -Spaltprodukten in AgCl:Cd-Kristallen durch eine zusätzliche Pb-Dotierung zu verbessern. Dazu wurden folgende Konzentrationen in Simultandotierungen kombiniert:

0, 1, 2, 5, 10, 30, 50, 100, 300, 600, 1000 ppm Cd;
0, 1, 2, 5, 10, 20 ppm Pb.

Von den für jede Kombination hergestellten beiden Kristallplättchen wurde jeweils eines nach dem Züchtgang bei 420 °C unter 200 Torr Cl_2 etwa 24 h nachgetempert, was insbesondere zu einer Aufreihung der Versetzungen in Mosaikstrukturen führte. Über die Ergebnisse dieser Untersuchung wird im Detail in Kürze berichtet (79). Hier sei lediglich erwähnt, daß das Minimum des Untergrundes und das Optimum des Spurenbildes bei getemperten AgCl-Plättchen mit einem Zusatz von 400...600 ppm Cd + 5...10 ppm Pb liegt. Diese günstigen Ergebnisse gelten bis jetzt nur für ^{252}Cf - und ^{235}U -Spaltprodukte und für beschleunigte Br-Ionen. Auch im Rahmen einer Untersuchung von Spalt-Isomeren wurde dieser Detektor verwendet (18). Es ist zu erwarten, daß AgCl-Kristalle mit der angegebenen kombinierten Dotierung hervorragende Detektoren für die Schwerionenforschung werden.

Eine weitergeführte Untersuchung von Fritsch (28) über einige Dotierungs-Kombinationen von 600 ppm Cd + (Pb+Au+Cu) bis jeweils 20 ppm ließ erkennen, daß auch Au-Zusätze den Spurennachweis in Kombination mit Cd günstig beeinflussen, nicht dagegen Cu.

4. Ergebnisse bei Mn-dotierten AgCl-Kristallen

Nachdem wir schon früh erkannt hatten, daß Mangan-Zusätze manchmal zur Spurendekoration führten, hat Polzin (30) die hierbei auftretenden schwierigen Dotierungs- und Einbauprozesse näher untersucht. Da Mn auch bei Zusätzen unter 1000 ppm als Metall oder Oxid ausfällt, mußte die Züchtung unter Chlor erfolgen, was wiederum die Kristallqualität (zu hohe Oberflächenspannung, Blasen usw.) verschlechterte. Durch Optimierung der Herstellungsparameter, d.h. Wahl der richtigen Züchtgeschwindigkeit und der passenden Partialdrucke im Gasgemisch $N_2 + Cl_2$, konnte mit 1000 ppm Mn-Dotierung ein guter AgCl-Detektor für ^{252}Cf -Spaltprodukte hergestellt werden. Die Züchtbedingungen sind leider ziemlich erschwert, zumal die durch den Cl_2 -Druck beeinflusste höhere Wertigkeit des eingebauten Mn-Ions von entscheidender Bedeutung für die Spurenbildung zu sein scheint.

5. Ergebnisse bei mit weiteren Elementen dotierten AgCl-Kristallen

In der folgenden Darstellung sollen die im Mikroskop sichtbaren Dekorationsergebnisse von mit Th- α -Teilchen beschossenen, dotierten AgCl-Kristallen nur stichwortartig beschrieben werden. Dabei wird insbesondere auf das sich bildende statistische photolytische Silber (print-out = p.o.) und dessen Reichweite ins Kristallinnere (p.o.-Tiefe), sowie auf die Dekoration von α -Spuren und von während des Herstellungsprozesses entstandenen mechanischen Kristalldefekten (Versetzungen usw.) eingegangen. Ferner wird die (meist gesteigerte) Silberbildung an "Druckstellen" (künstlich erzeugte plastische Verformungszonen) des Kristalls erwähnt.

Bei undotierten AgCl-Kristallen betrug die p.o.-Tiefe etwa 10 bis 20 μm , das print-out bestand aus ca. 0,5 μm starken Ag-Partikeln; mechanische Defekte wurden im allgemeinen kaum dekoriert, dagegen stärker an künstlichen "Druckstellen".

Die vorliegenden Dotierungs-Experimente haben lediglich orientierenden Charakter. Sie sollen sowohl verfeinert, als auch unter Einbeziehung anderer Elemente und von Simultandotierungen weiter fortgeführt werden.

a) Dotierung mit Li, Na, K, Rb, Cs

Die Ergebnisse der Alkali-Dotierungen sind von Fritsch (28) näher beschrieben worden. Außer bei Cs ab etwa 1000 ppm waren die Zusätze gut löslich. p.o.-Tiefe: bis 30 μm , bei K bis 80 μm ; mechanische Defekte wurden dekoriert, stärker an Druckstellen. Bei Na-Dotierung wurden manchmal einige Spuren dekoriert, aber nicht reproduzierbar. Zusätze der restlichen Alkalien ergaben keine dekorierbaren Spuren.

b) Dotierung mit Be, Mg, Ca, Sr, Ba

Zusatz von Mg führte manchmal zu Ausscheidungen an der Oberfläche. Die Mischbarkeit war bei Ca ab 3000 ppm, bei Sr ab 1000 ppm und bei Ba ab 100 ppm überschritten (weiße Trübung). Die p.o.-Tiefe ging bis 30 μm , bei Sr durch die ganze Plättchendicke (lichtempfindlich). An Druckstellen trat verstärktes p.o. und Dekoration der mechanischen Defekte auf. Bei Anwesenheit von Ca und Sr zeigten sich nicht reproduzierbare Ansätze einer Spurendekoration, bei den anderen Erdalkalien fehlten auch diese.

c) Dotierung mit Al, In, Ce, Dy

Abgesehen vom Indium bereitet eine Dotierung mit diesen Elementen Schwierigkeiten. Sie haften z.T. im Quarzgefäß oder scheiden sich als weiße Flöckchen ab 300 ppm aus. p.o.-Tiefe: bis 40 μm (bei Al bis 70 μm). Dekoration mechanischer Defekte besonders an Druckstellen. Zusatz von Al erhöhte die Empfindlichkeit an Druckstellen und ergab nicht reproduzierbare Spurenansätze ab 600 ppm. Bei den anderen drei Elementen war eine Spurendekoration nicht zu beobachten.

d) Dotierung mit Cu⁽¹⁺⁾, Zn, Hg, Ge, Sn, Sb

Mit Ausnahme von Cu und Ge zeigen die Kristalle bei den anderen Elementen bei zunehmender Konzentration milchig-weiße Ausscheidungen. Hg sublimiert beim Dotieren leicht heraus. Die p.o.-Tiefe (sehr feines p.o.!) beträgt bis 15 µm bei Zn, Hg, Ge, bis 50 µm bei Cu und Sn, bis 90 µm bei Sb. Mechanische Defekte werden an Druckstellen bei Zn, Hg und Ge stärker, bei Sn und Sb gleichbleibend, bei Cu dagegen nicht mehr dekoriert; bei Cu unterbleibt dann auch die Photolyse! Diffuse, nicht reproduzierbare Spurendekoration trat bei Zugabe von Sn und Sb in niedrigen Dotierungen auf. Die restlichen 4 Elemente ergaben keine Spurendekoration.

e) Dotierung mit Ti, V, Cr

Der Einbau dieser Elemente in die AgCl-Matrix war sehr schwierig. Die Kristalle zeigten mit zunehmender Konzentration Ausscheidungen (bei Ti und V schon etwa ab 100 ppm). Farbe des Ausfalls: gelblich (Ti, V) und braunrot (Cr). Ti-Zusatz führte zu feinem p.o. bis 20 µm Tiefe (bei Zusatz von Cr bildete sich eine unempfindliche Oberflächenzone aus, während der Restkristall mit feinem Korn durchdekoriert war). Spurenansätze waren ab 1000 ppm bei V unter starker p.o.-Bildung festzustellen. Ti und Cr zeigten keine Spurendekoration.

f) Dotierung mit Fe, Co, Ni, Pd

Zusätze von Elementen der Eisengruppe und von Pd führten ab 300-600 ppm zu starken Abscheidungen von Chloriden oder Hydroxiden in AgCl (Fe und Pd braun, Co bläulich, Ni grün). Bei Fe und Co erscheinen bis 50 µm Tiefe p.o.-Wolken, besonders auch an mechanischen Gitterstörungen. Ni und Pd wirken ausgesprochen desensibilisierend auf die Photolyse: p.o. war nicht zu erkennen. Spuren wurden bei Anwesenheit der 4 Elemente nicht dekoriert.

II. Die Deltastrahlen-Theorie, angewandt auf AgCl-Detektoren

1. Teilchen-Energieverlust durch Ionisation der Bremsmaterie

Zur Erklärung der Entstehung von Spuren ionisierender Teilchen in Festkörpern stehen heute unter anderem zwei neuere Theorien halbempirischen Charakters zur Verfügung. Beide Theorien behandeln nur den Energiebereich, in dem die Wechselwirkung Teilchen-Materie im wesentlichen auf Ionisation beruht.

Bei einem Primärionisationsakt entstehen mehr oder weniger stark ionisierte Gitteratome und Elektronen, sog. δ -Strahlen, die einen Teil der Energie des Strahl-Ions als kinetische Energie aufnehmen, um von der Teilchenbahn wegzufiegen.

Ausgehend von den an ätzbaren Spuren-Detektoren (Muscovit-Glimmer, Hexan-Polykarbonat, Cellulosenitrat, Silikaten u.a.) gefundenen Ergebnissen entwickelten Fleischer, Price und Walker (81) den sogenannten explosion-spike-Mechanismus. Hierbei bleibt der von den δ -Elektronen weggeführte Energieanteil unberücksichtigt, und die erleichterte Ätzbarkeit entlang der Teilchenspur wird allein auf die dort gebildeten einfach oder mehrfach positiven Ionen zurückgeführt.

In der von den genannten Autoren entwickelten Theorie werden makroskopisch gewonnene Materialkonstanten, wie z.B. elastische und Dielektrizitäts-Konstanten, z.T. recht unbedenklich zur Beschreibung von Vorgängen herangezogen, die sich in atomaren Bereichen abspielen. Die Anhäufung einer positiven Überschußladung entlang der Teilchenspur soll hiernach Ursache einer von der Teilchenspur weg gerichteten elektrostatischen Druckspannung σ_e sein, der die elastische Druckspannung σ_m der verspannten Umgebung entgegenwirkt.

Ausgehend von den Materialdaten dielektrischer Stoffe konnten Fleischer u.a. zeigen, daß $|\sigma_e| \gg |\sigma_m|$ wird und es dadurch zu einer "Explosion" des Core-Gebietes um die Teilchenspur kommt. Hierbei werden die Core-Ionen in das umliegende Kristallgebiet geschleudert, wo sie Zwischengitterplätze einnehmen. Auf diese Weise entsteht um die Teilchenspur ein leicht ätzbarer Schlauch. Im Falle der Halbleiter und

Metalle ist wegen der hohen Elektronen- oder Löcherleitfähigkeit bzw. wegen der großen Dichte freier Elektronen $|\sigma_e| < |\sigma_m|$. Die Explosion findet nicht statt, Metalle und Halbleiter sind danach nicht als ätzbare Detektoren verwendbar. Diese Ergebnisse werden qualitativ durch die Erfahrung bestätigt.

Im Gegensatz zu Fleischer u.a. sehen Kobetich und Katz (82) ausschließlich die Deltastrahlen als die entscheidende Ursache für die Spurenentstehung an. Durch die Deltaelektronen wird die von ionisierenden Primärteilchen abgegebene Energie auf die Umgebung der Teilchenspur übertragen, so daß es dort ebenfalls zu einer Ionisierung und Anregung der Gitterbausteine, zum Aufbrechen chemischer Bindungen u. dergl. kommen kann. In seiner Theorie versucht Katz, alle Arten von Strahlenwirkungen in lebenden (83) und nichtlebenden (82, 84, 85) Substanzen auf die Deltastrahlen zurückzuführen. Besonders gute Erfolge konnte er bei der Analyse von mit Elektronen oder mit Ionen beschossenen Kernspuremulsionen erzielen (86, 87, 88, 89).

In den Silberhalogenid-Kristalldetektoren ist die Spurentstehung - wie in der Kernspuremulsion - nicht ohne die entscheidende Mitwirkung des photographischen Elementarprozesses denkbar. Die Katz'sche Theorie schien deshalb am besten geeignet, für die Energieübertragung Partikel $\rightarrow$ AgCl-Kristall herangezogen zu werden. Neben einer kurzen Darstellung der Theorie werden die entsprechenden Ergebnisse für AgCl wiedergegeben. Die hierbei erforderlichen sehr umfangreichen Berechnungen wurden mit Hilfe von selbst aufgestellten FORTRAN-V-Programmen auf der Rechananlage UNIVAC 1108 des Zentralen Recheninstituts der Universität Frankfurt am Main durchgeführt.

2. Materialdaten des AgCl-Kristalls

Bei den Rechnungen werden Materialkonstanten teils für die Komponenten Ag (Index = 1) und Cl (Index = 2), teils für die Verbindung AgCl (ohne Index) benötigt.

Aus Tabellen wurden entnommen:

Loschmidt-Konstante	$L = 6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
Elektronenladung	$e = 4,802 \cdot 10^{-10} \text{ erg}^{1/2} \text{ cm}^{1/2}$
Elektronenruhmasse	$m_e = 9,109 \cdot 10^{-28} \text{ g}$
Vakuumlichtgeschwindigkeit	$c_0 = 2,99792 \cdot 10^{10} \text{ cm/sec}$
Umrechnungsfaktor	$1 \text{ erg} = 6,242 \cdot 10^8 \text{ keV}$
Ladungszahlen	$Z_1 = 47 \quad Z_2 = 17$
Rel. Atommassen	$A_1 = 107,870 \quad A_2 = 35,453$

Nach den neuesten röntgenographischen Messungen von Vallin (90) erhält man durch Interpolation für Raumtemperatur (20,7 °C):

Gitterkonstante	$a = 5,5489 \text{ Å}$
Dichte	$\rho = 5,570 \text{ g/cm}^3$

Durch Rechnung ergeben sich mit den obigen Daten:

Rel. Molekülmasse	$M = 143,323$
Molekülzahldichte	$N_M = L \cdot \rho / M = 2,34035 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
Elektronenzahldichten	$N_{e,1} = Z_1 \cdot N_M = 1,09996 \cdot 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ $N_{e,2} = Z_2 \cdot N_M = 0,39786 \cdot 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ $N_e = 1,49782 \cdot 10^{24} \text{ cm}^{-3}$
Partialdichten	$\rho_1 = \rho \cdot A_1 / M = 4,192 \text{ g/cm}^3$ $\rho_2 = \rho \cdot A_2 / M = 1,378 \text{ g/cm}^3$
Mittlere Ladungszahl	$Z = (Z_1 \cdot A_1 + Z_2 \cdot A_2) / M = 39,580$

3. Ionisationsenergie des AgCl

Bei der späteren Berechnung des Energiespektrums der Deltastrahlen spielt das Ionisationspotential I für AgCl eine wichtige Rolle. Sternheimer (91) benutzt folgende für jede Hauptquantenzahl n gemittelten Ionisationsenergien ($f' =$ relative Besetzungszahl der einzelnen Schalen):

Schale (n)	Ag		Cl	
	I_n [eV]	f'_n	I_n [eV]	f'_n
K	$2,54 \cdot 10^4$	2/47	$2,83 \cdot 10^3$	2/17
L	$3,54 \cdot 10^3$	8/47	201	8/17
M	494	18/47	54,4	7/17
N	65,6	18/47	-	-
O	7,48	1/47	-	-

Nimmt man noch - obwohl die Bindung im AgCl-Gitter allgemein unberücksichtigt bleibt - den Bandabstand des AgCl hinzu, so ergibt sich ein Spektrum der Ionisationsenergien von etwa 3 eV bis 25 000 eV. (Zusätzliche, diese Energien beeinflussende Effekte sind hierbei vernachlässigt.) Skirda (92) z.B. berücksichtigt ein derart breites, allerdings stark modifiziertes Energiespektrum bei der Ermittlung von Deltastrahlenspektren in Emulsionen. Bei exakter Behandlung ist die Wichtung der einzelnen Energien mit den wahren Oszillatorenstärken f_n , die zum großen Teil unbekannt sind, von entscheidender Bedeutung (93). Das Ionisationsenergiespektrum wird dann stark verändert.

Zur Vereinfachung der rechnerischen Behandlung wurde bei den folgenden eigenen Berechnungen sowohl für das Ag-Atom als auch für das Cl-Atom je eine gemittelte Ionisationsenergie verwendet. In ähnlicher Weise verfuhr auch Katz (82) in seinen Rechnungen für andere Substanzen. Gemäß Turner (93) und Berger u. Seltzer (94) läßt sich unter Berücksichtigung vieler experimenteller Ergebnisse eine "adjusted

mean excitation energy I_{adj} " mit Hilfe einer empirisch ermittelten Formel für Elemente berechnen. Diese Energie, im Folgenden als "angepaßte mittlere Ionisierungsenergie I_a " bezeichnet, ergibt sich nach (93, 94) für $Z > 13$ zu:

$$I_a = Z \cdot (9,76 + 58,5 \cdot Z^{-1,19}) \quad [\text{eV}] \quad (\text{D1})$$

Für Verbindungen wird eine Summation (Bragg's rule) empfohlen (Gitterbindungseffekte sind hierin nicht berücksichtigt!):

$$\log \langle I_a \rangle = \langle \frac{Z}{M} \rangle^{-1} \cdot \frac{1}{\rho} \sum_i \frac{Z_i}{A_i} \rho_i \cdot \log I_{a,i} \quad (\text{D2})$$

wobei $\langle \frac{Z}{M} \rangle = \frac{1}{\rho} \sum_i \frac{Z_i}{A_i} \rho_i$

Hiermit erhält man für AgCl:

$$I_{a,1} = 487,0 \text{ eV}$$

$$I_{a,2} = 200,2 \text{ eV}$$

$$I_a = 384,6 \text{ eV}$$

Wegen der nichtlogarithmischen Komponentenaddition in der später verwendeten Katz'schen Formel (D7') des Deltastrahlen-Energiespektrums - im Gegensatz etwa zur Formel von Bethe (95) über den Energieverlust schwerer Teilchen (D14) - wurde die Beziehung (D2) im Folgenden nicht mehr benutzt, sondern es wurde stets nur mit $I_{a,1}$ und $I_{a,2}$ getrennt gerechnet.

4. Energieverlust von Elektronen in AgCl-Kristallen

Um den Mechanismus der Energieübertragung durch δ -Strahlen bei der Einwirkung ionisierender Teilchen auf AgCl-Kristalle besser übersehen zu können, soll zunächst der Energieverlust monoenergetischer Elektronen bei senkrechter Inzidenz in der Bremsmaterie (AgCl) untersucht werden. Unter Zugrundelegung der Meßergebnisse von Elektronenbeschußexperimenten verschiedener Autoren (Elektronen-Energien etwa 50 keV bis 2 MeV, Bremsmaterie: Metalle und Plastiks) haben Kobetich und Katz (82, 96) die in den Formeln für die Reichweite R und den spezifischen Energieverlust dE_e/dx eines Elektrons auftretenden Parameter bestimmt. Bei der in (96) beschriebenen, neueren Methode wird die von Weber (97) aufgestellte Energie-Reichweite-Formel verknüpft mit einer von Depouy u.a. (98) eingeführten Beziehung zur Berechnung des Transmissionsfaktors η . Die Größe $\eta = \eta(x)$, auch Durchlaßwahrscheinlichkeit genannt, ist derjenige Anteil an Elektronen eines Elektronenstrahles, der eine Materieschicht von der Dicke x noch durchdringt.

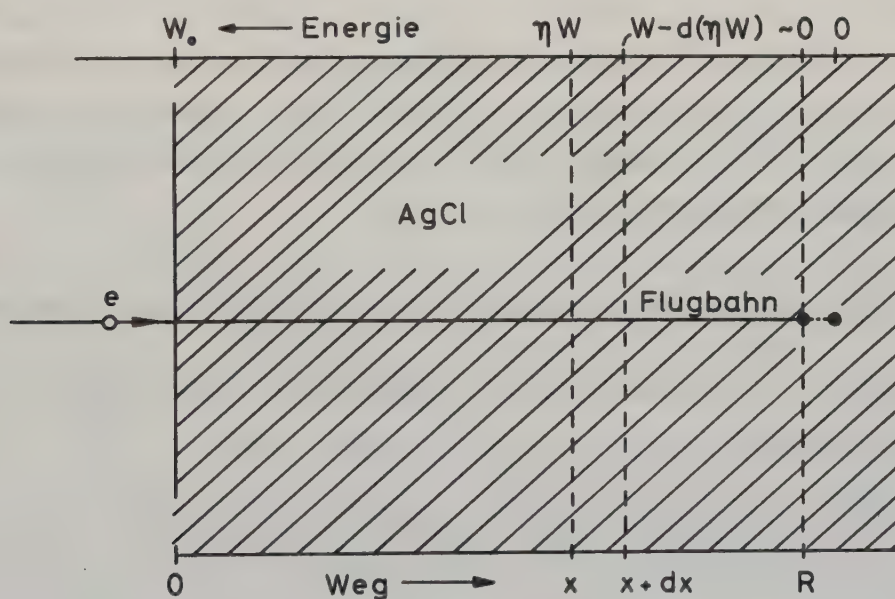


Abb. 36. Abbremsung eines Elektrons

Abb. 36 zeigt schematisch die Verhältnisse beim Abbremsen eines Elektrons mit der Anfangsenergie W_0 in AgCl. Wie üblich ist die Elektronenstromdichte auf 1 Teilchen/cm²/sec normiert.

Zu bemerken ist, daß bei der "Reichweite" R der Faktor η keineswegs auf 0 abgesunken ist. Dagegen ist der Energieverlust dE_e/dx der über R hinausfliegenden Elektronen vernachlässigbar gering. Nach (96) gilt für 1 Elektron (Energien sind hier und später stets in keV einzusetzen, falls nichts anderes vermerkt!):

$$\text{Reichweite} \quad R = A \cdot W_0 \cdot \left[1 - \frac{B}{1+C \cdot W_0} \right] \quad [\text{g/cm}^2] \quad (\text{D3})$$

$$\text{Transmissionsfaktor} \quad \eta = \exp \left[-(q \cdot x/R)^p \right] \quad (\text{D4})$$

$$\text{Restenergie} \quad W(x) = W_0(R-x) \quad [\text{keV}] \quad (\text{D5})$$

für $x/R \leq 0,9$ ist

$$\text{spez. Energieverlust} \quad dE_e/dx = d(\eta W)/dx \quad [\text{keVcm}^2/\text{g}] \quad (\text{D6})$$

für $x/R > 0,9$ ist

$$dE_e/dx = (dE_e/dx)_{0,9R} \cdot (\eta/\eta_{0,9R})^{4/p} \quad [\text{keVcm}^2/\text{g}] \quad (\text{D6}')$$

Die (Rest-)Energie $W(x)$ des Elektrons wurde gemäß Formel (D5) aus der Beziehung (D3) hergeleitet. Bei der Umformung von (D3) ist die Bedingung $W(R) = W_0(R-R) = W_0(0) = 0$ zu berücksichtigen. Die komplizierte Beziehung für den spezifischen Energieverlust dE_e/dx gemäß (D6) und (D6') konnte wiederum aus (D4) und (D5) in expliziter Darstellung gewonnen und im Rechenprogramm verwertet werden.

Die benutzten Konstanten erhalten für AgCl folgende Werte:

$$A = (0,81 \cdot Z^{-0,38} + 0,18) \cdot 10^{-3} = 3,80191 \cdot 10^{-4} \text{ gcm}^{-2}\text{keV}^{-1}$$

$$B = 0,21 \cdot Z^{-0,055} + 0,78 = 9,51537 \cdot 10^{-1}$$

$$C = (1,1 \cdot Z^{0,29} + 0,21) \cdot 10^{-3} = 3,40640 \cdot 10^{-3} \text{ keV}^{-1}$$

$$q = 0,0059 \cdot Z^{0,98} + 1,1 = 1,31696$$

$$p = 1,8/\lg Z + 0,31 = 1,43678$$

Mit Hilfe dieser Konstanten konnten die Größen in (D3) bis (D6') für AgCl berechnet werden. In den Abb. 37, 38, 39 sind ausgewählte Rechenergebnisse graphisch dargestellt.

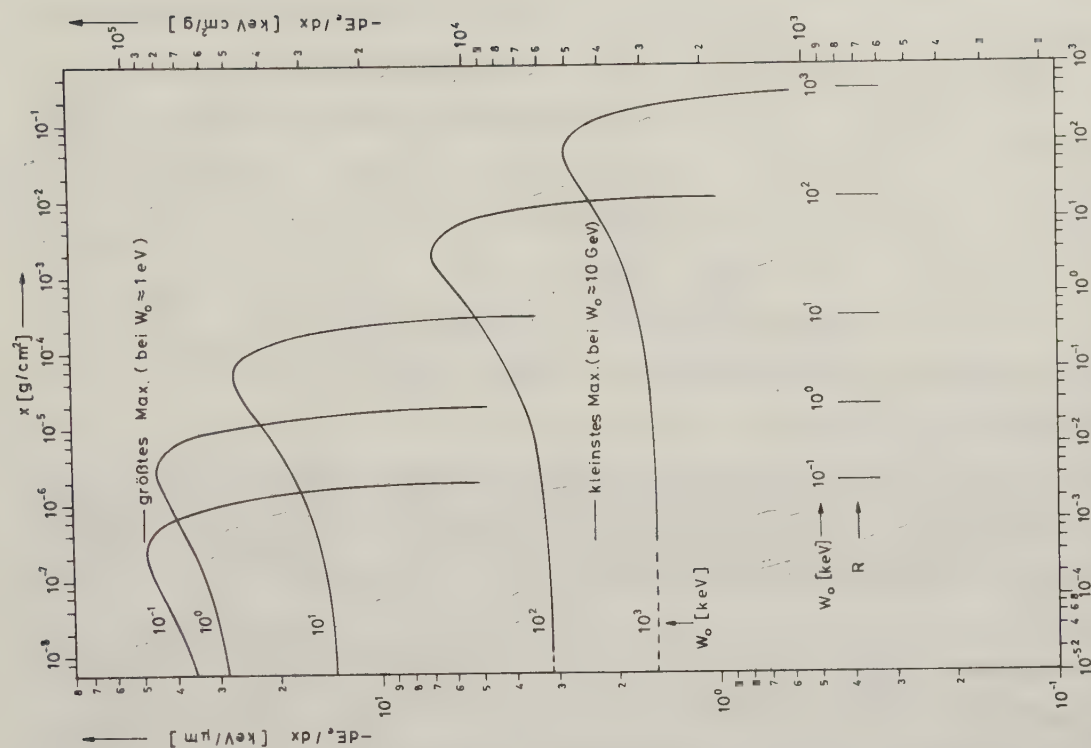


Abb. 39. Spezifischer Energieverlust von Elektronen in AgCl

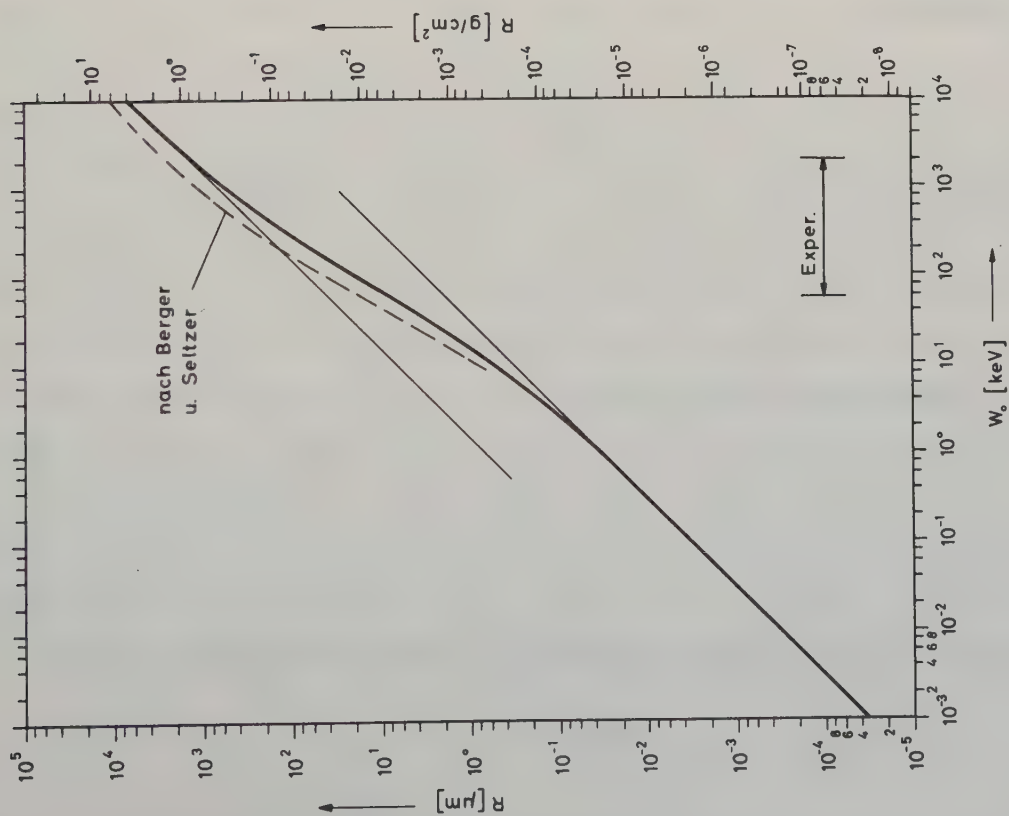


Abb. 37. Reichweite von Elektronen mit Anfangsenergie W_0 in AgCl.
(gestrichelt = Werte aus (94))

Die Abb. 37 zeigt die sich aus (D3) ergebende Reichweite R in Abhängigkeit von der Anfangsenergie W_0 (stark ausgezogene Kurve). Der Energiebereich, der - allerdings bei anderen Substanzen als AgCl - durch Experimente gesichert ist, liegt zwischen 50 und 2000 keV und ist durch "Exper." angedeutet. Die darüber hinausgehenden Kurventeile sind als Extrapolationen anzusehen. (Das gilt auch für die anderen Diagramme.) Danach ist die Reichweite-Energie-Abhängigkeit für sehr kleine und sehr große Anfangsenergien linear (in Abb. 37 dünn angedeutet):

$$\begin{aligned} \text{Für } W_0 \lesssim 1\text{keV} \quad & \text{gilt } R \approx 1,843 \cdot 10^{-5} \cdot W_0 \quad [\text{g/cm}^2], \\ \text{für } W_0 \gtrsim 30\text{MeV} \quad & \text{gilt } R \approx 3,802 \cdot 10^{-4} \cdot W_0 \quad [\text{g/cm}^2]. \end{aligned} \quad (\text{D3}')$$

Zum Vergleich sind die von Berger und Seltzer (94) berechneten Elektronenreichweiten in AgCl eingetragen. Die beiden Reichweitekuren zeigen einen ähnlichen Gang, jedoch liegen die R -Werte nach Katz um ca. 50 % tiefer. Da die Katz'schen Werte gerade in dem vergleichbaren Bereich durch Experimente belegt sind, dürften sie den wahren Verhältnissen besser gerecht werden.

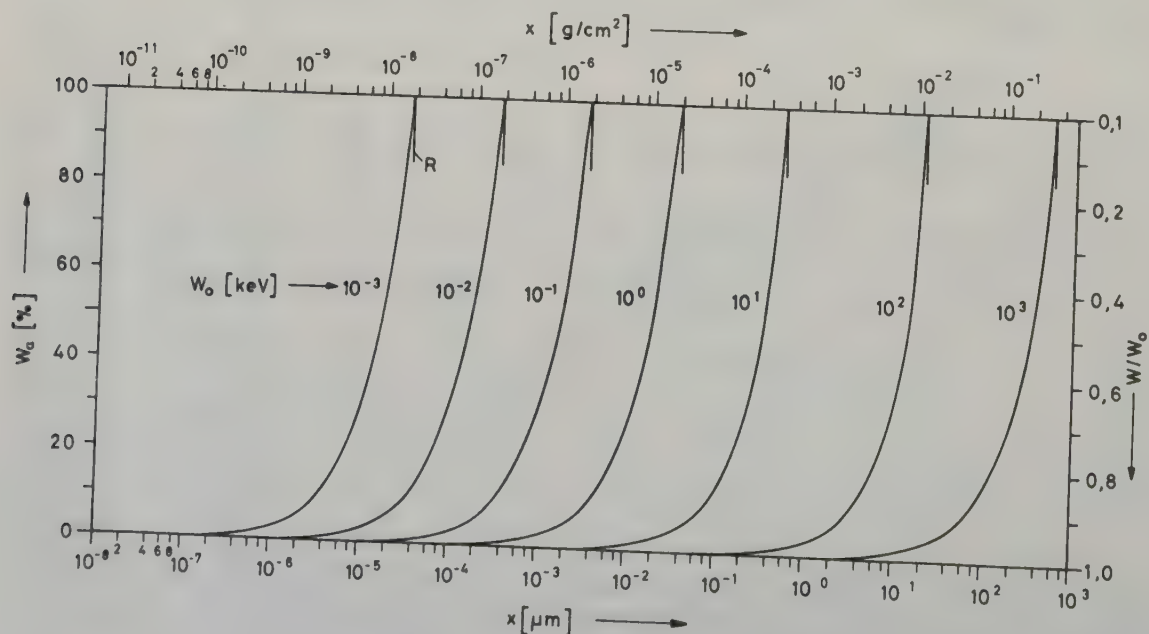


Abb. 38. Relative Restenergie von Elektronen mit Anfangsenergie W_0 , bzw. vom AgCl absorbierte Energie W_a .

In Abb. 38 ist für Elektronen-Anfangsenergien W_0 von 1 eV bis 1 MeV die relative Restenergie W/W_0 des Elektrons bzw. die vom AgCl absorbierte Energie $W_a = 1 - W/W_0$ in Abhängigkeit von der durchlaufenen Wegstrecke x dargestellt.

Abb. 39 gibt schließlich den Verlauf des spezifischen Energieverlustes dE_e/dx entlang der Elektronenbahn x wieder. Als Parameter tritt hier die Anfangsenergie W_0 zwischen 100 eV und 1 MeV auf. Man erkennt, daß die (dE_e/dx) -Kurven einen Maximalwert erreichen, wenn der vom Elektron zurückgelegte Weg x etwa 10 bis 20 % der jeweiligen Reichweite $R = R(W_0)$ beträgt. Je niedriger die Anfangsenergie W_0 war, um so höher liegen die (dE_e/dx) -Werte und deren Maxima. Man beachte, daß es sich hier um keine echten Bragg-Kurven handelt, wie sie beim Abbremsen von schweren Teilchen (Ionen) benutzt werden. In einem solchen Falle müßten z.B. Elektronen jeder Anfangsenergie W_0 die gleiche Kurve durchlaufen, d.h. alle Maxima der Abb. 39 müßten, sofern sie überhaupt von Elektronen niedriger Energie W_0 noch ausgebildet werden, gleich hoch liegen. Wegen des zu berücksichtigenden Transmissionsfaktors η existieren jedoch im betrachteten Bereich für jedes W_0 Maxima der (dE_e/dx) -Kurven, und diese liegen für größere Energien W_0 tiefer. Die Maxima erreichen, wie die Rechnung zeigt, für $W_0 \approx 1$ eV ein absolutes Maximum und für $W_0 \approx 10$ GeV ein absolutes Minimum. Das sind allerdings Anfangsenergiwerte, für die die Katz'schen Ansätze überfordert sein dürften. Insbesondere überwiegt bei sehr hohen Elektronenenergien der durch Strahlung erlittene Energieverlust. Der Anteil der Bremsstrahlung am spezifischen Gesamtenergieverlust eines Elektrons ist allerdings bei normalen Energien vernachlässigbar; er beträgt nach (94) in AgCl 0,1 % bei $W_0 = 10$ keV, 0,6 % bei 100 keV, 3,7 % bei 1 MeV, 20 % bei 10 MeV. Erst bei der kritischen Energie $W_{crit} = 19,8$ MeV verteilt sich der Energieverlust zu gleichen Teilen auf Bremsstrahlung und auf Ionisation.

5. Deltastrahlen-Energiespektrum in AgCl-Kristallen

Geladene Teilchen genügend hoher Energie erzeugen durch ionisierende Stöße längs ihres Weges δ -Elektronen mit einem kontinuierlichen Energiespektrum. Ausgehend von einer zunächst von Mott (99) aufgestellten, später von Bradt und Peters (100) für das vorliegende Problem modifizierten Formel finden Kobetich und Katz (82) für die Anzahl der pro cm Bahnlänge im Energieintervall zwischen W' und $W'+dW'$ gebildeten δ -Elektronen den folgenden Ausdruck:

$$\frac{dN_{\delta}}{dW'} = \frac{2\pi N_e \cdot e^4 \cdot Z_{\text{eff}}^2}{m_e v^2} \cdot \frac{1}{W'^2} \cdot \left[1 - \beta^2 \cdot \frac{W'}{W_m} + \frac{\pi\beta \cdot Z_{\text{eff}}}{137} \cdot \sqrt{\frac{W'}{W_m}} \cdot \left(1 - \frac{W'}{W_m} \right) \right] \quad (\text{D7})$$

Hierin ist $v = \beta \cdot c_0$ die Teilchengeschwindigkeit. Die effektive Ladungszahl kann nach der von Heckmann u.a. (101) und von Barkas (1) angegebenen Formel

$$Z_{\text{eff}} = Z \cdot [1 - \exp(-125\beta/Z^{-2/3})] \quad (\text{D8})$$

näherungsweise berechnet werden. Gemäß der von uns tabellierten Werte haben hiernach α -Teilchen ab etwa $\beta = 0,05$ (4,7 MeV) mit $Z_{\text{eff}} \approx 2$ ihren höchsten Ladungszustand. Sauerstoffatome ($Z = 8$, $A = 16$) haben bei $\beta = 0,01$ (0,75 MeV) ein Z_{eff} von 2,15 und sind ab etwa $\beta = 0,16$ (195 MeV) mit $Z_{\text{eff}} = 7,946$ praktisch voll ionisiert.

Die Energie W' ist die bei einem Ionisierungsstoß übertragene Gesamtenergie. In ihr ist sowohl der zur Abtrennung eines Elektrons erforderliche Energieanteil $I_{a,i}$ als auch die dem Elektron mitgegebene kinetische Energie W_0 enthalten. Nur dieser Anteil, also

$$W_0 = W' - I_{a,i} \quad (\text{D9})$$

ist - siehe auch Rudd u.a. (102) - für die weitere Wechselwirkung des δ -Elektrons mit der Bremsmaterie, in unserem Falle also dem AgCl-Gitter, maßgebend. Der Index i steht hier und im folgenden stets für die Komponenten Ag und Cl.

Nach den klassischen Stoßgesetzen ist die maximal übertragbare Energie W_m für den vorliegenden Fall - Masse des stoßenden Teilchens (m_{Ion}) groß gegen Masse des gestoßenen Teilchens (m_e) - nicht mehr von m_{Ion} abhängig. Im relativistischen Bereich gilt:

$$W_m = \frac{2m_e c^2 \beta^2}{1 - \beta^2} \quad (D10)$$

Dieser Energiebetrag stellt demzufolge auch die obere Grenze für die kinetische Energie dar, die das δ -Elektron im Falle eines rein-elastischen Stoßes aufnehmen kann.

Bei der Berechnung des Deltastrahlen-Spektrums wurde die Formel (D7) in 2 Terme aufgespalten, damit Z_{eff} als Faktor vor die zu berechnenden Größen gesetzt werden konnte. Die Werte der Komponenten A_g und C_l wurden jeweils einzeln berechnet und dann addiert:

$$\frac{dN_\delta}{dW'} = Z_{eff}^2 \cdot \sum_i N_{e,i} \cdot F_i(\beta, W') + Z_{eff}^3 \cdot \sum_i N_{e,i} \cdot G_i(\beta, W') \quad (D7')$$

Durch Vergleich mit (D7) ergeben sich für die zur Abkürzung eingeführten Funktionen F_i und G_i :

$$F_i(\beta, W') = \frac{2\pi e^4}{m_e v^2} \cdot \frac{1}{W'^2} \cdot \left[1 - \beta^2 \cdot \frac{W'}{W_m} \right] \quad (D7'')$$

$$G_i(\beta, W') = \frac{2\pi e^4}{m_e v^2} \cdot \frac{1}{W'^2} \cdot \left[\frac{\pi \beta}{137} \cdot \sqrt{\frac{W'}{W_m}} \cdot \left(1 - \frac{W'}{W_m} \right) \right] \quad (D7''')$$

In Abb. 40 entsprechen die beiden Kurvenscharen jeweils den beiden Summen von (D7'). Sie zeigen also, wie die durch Z_{eff}^2 (voll ausgezogen) bzw. durch Z_{eff}^3 (gestrichelt) dividierten (dN_δ/dW') -Werte von W' abhängen. Scharparameter ist die durch β ausgedrückte Geschwindigkeit des Primärteilchens. Für die praktische Anwendung vorteilhafter ist eine Darstellung, in der nicht von der beim Stoß übertragenen Energie W' , sondern

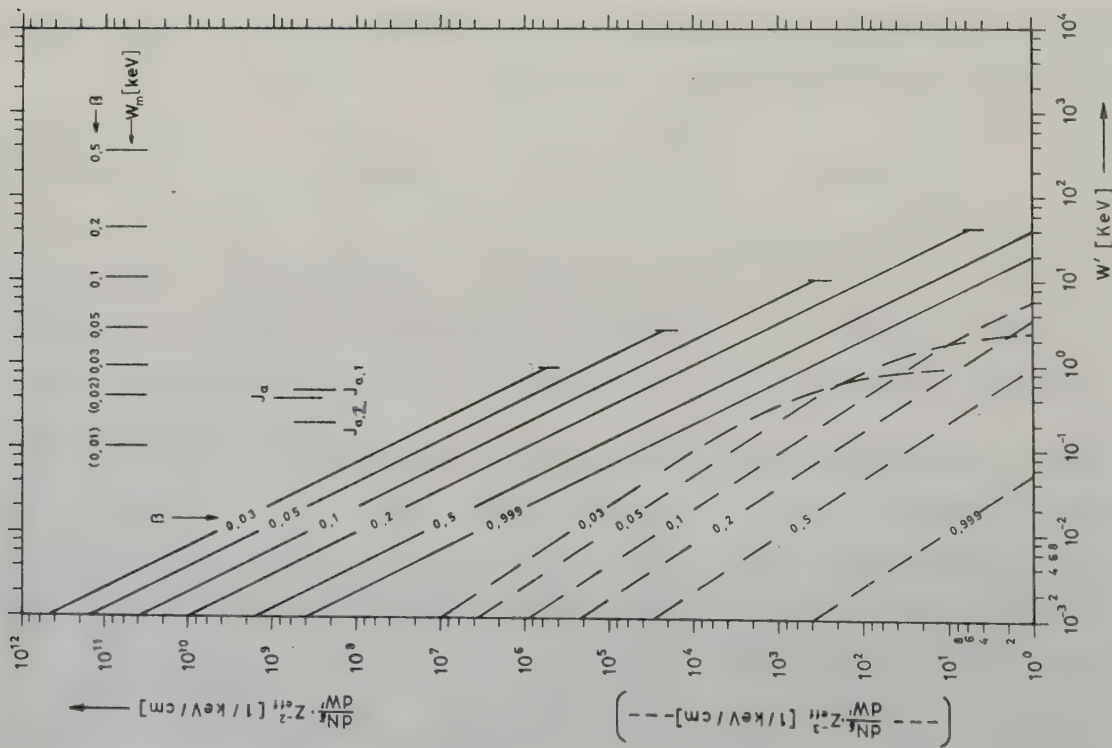


Abb. 40 Energiespektrum der Deltastrahlen in AgCl, ohne Berücksichtigung der Ionisationsenergie I_a

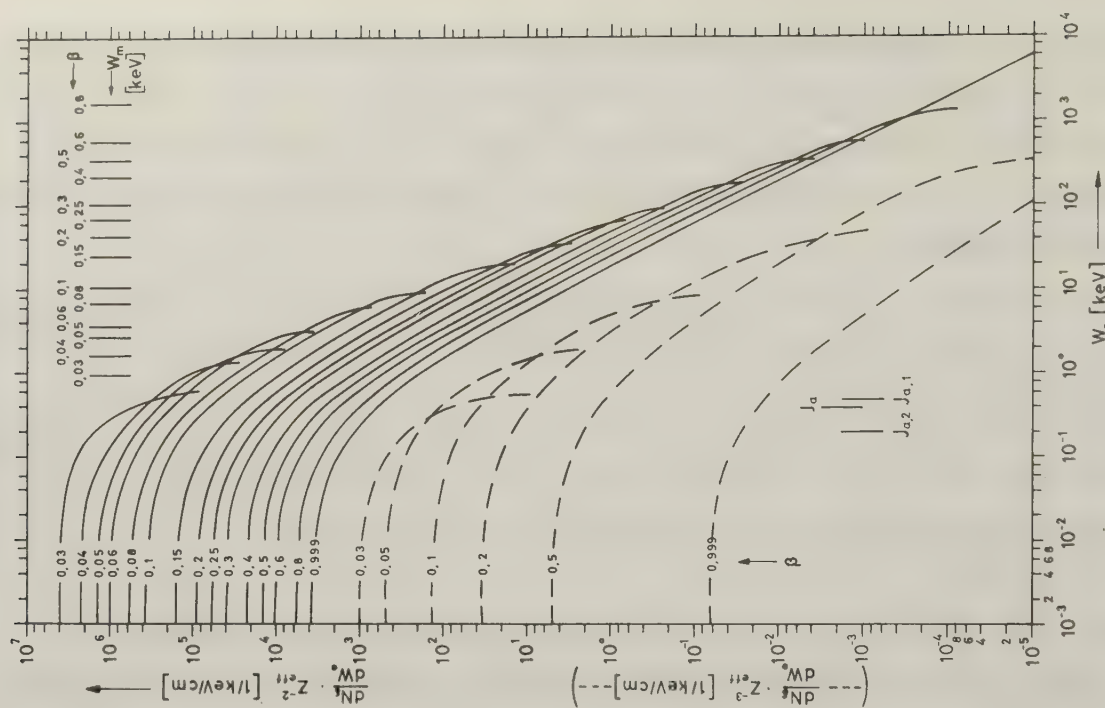


Abb. 41 Energiespektrum der Deltastrahlen in AgCl, mit Berücksichtigung der Ionisationsenergie I_a

von der dem δ -Elektron wirklich mitgegebenen kinetischen Energie W_0 ausgegangen wird. Mit Hilfe der Substitution $W' = W_0 + I_{a,i}$ nach (D9) kann Gl. (D7') entsprechend umgeformt werden; die zugehörigen Kurvenscharen zeigt Abb. 41.

Diskussion der Deltastrahlen-Spektren:

Wie man den Abb. 40 und 41 entnimmt, liegen die gestrichelten Kurven jeweils um etwa 3 Zehnerpotenzen niedriger als die entsprechenden - d.h. zum gleichen β -Wert gehörenden - ausgezogenen Kurven. Obwohl also die zweite Summe in (D7') mit einem um Z_{eff} stärkeren Gewicht eingeht als die erste Summe, kann man sich in der Diskussion auf den ersten Term von (D7') beschränken. Da der Wert der eckigen Klammer der in (D7') enthaltenen Größe F (D7'') nur für $W' \rightarrow W_m$ stark von eins abweicht, wird (dN_δ/dW') für vorgegebene Werte von β und Z_{eff} im wesentlichen durch $dN_\delta/dW' \sim 1/W'^2$ dargestellt (Geraden in der doppeltlogarithmischen Darstellung!). Für hohe Energien wird die Ionisationsenergie vernachlässigbar: $W' \rightarrow W_0$ für $W' \gg I_a$; die Kurven der Abb. 40 und 41 müssen sich in diesem Bereich annähernd decken, was auch die beiden Abbildungen deutlich zeigen. Vergleicht man die Anzahl der Deltastrahlen mit Energien unterhalb der Ionisationsenergie I_a , so ergeben sich erhebliche Abweichungen der (dN_δ/dW_0) -Werte in der Abb. 41 gegenüber den (dN_δ/dW') -Werten der Abb. 40. Diese Unterschiede betragen bei 10 eV etwa $10^3/\text{keV/cm}$, bei 1 eV sogar $10^5/\text{keV/cm}$. Hier zeigt sich noch einmal deutlich, daß im Bereich kleiner Energieübertragung die Ionisationsenergie - also der unelastische Anteil - gegenüber der kinetischen Energie des δ -Elektrons nicht mehr vernachlässigbar ist. In Wirklichkeit ist allerdings diese Abweichung etwas weniger stark ausgeprägt, da die Ionisationspotentiale I_a - wie schon in Abschnitt 3. erläutert - in Wahrheit einen größeren Bereich überstreichen und nicht nur aus den beiden gemittelten Ag- und Cl-Potentialwerten bestehen.

6. Energieverlust der Deltastrahlen-Gesamtheit im AgCl

Ein durch ein ionisierendes Teilchen freigesetztes δ -Elektron mit der Energie W_0 verläßt die Teilchenbahn unter einem Winkel θ , der sich aus $\cos^2 \theta = W_0/W_m$ ergibt (Abb. 42).

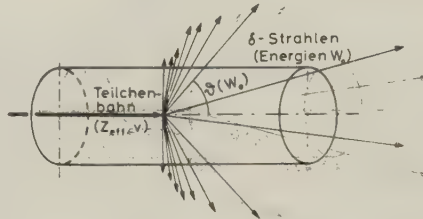


Abb. 42. Deltastrahlenproduktion durch ein ionisierendes Teilchen

Um die folgende Rechnung zu vereinfachen, wurde diese Winkelverteilung vernachlässigt und $\theta = 90^\circ$ gesetzt, was streng nur für $W \ll W_m$ gilt. Diese Vereinfachung scheint gerechtfertigt, da wegen der $1/W_0^2$ -Abhängigkeit Deltastrahlen höherer Energien zahlenmäßig nur sehr schwach im Spektrum vertreten sind (Abb. 41). Außerdem ist der Energieverlust höherenergetischer Deltaelektronen in Materie relativ niedrig (Abb. 39).

Um eine quantitative Aussage über den Energieverlust der von einem Teilchen ausgelösten Deltastrahlen-Gesamtheit machen zu können, betrachten wir eine Zylinderschale aus Bremsmaterie (AgCl) von 1 cm Länge, x g/cm² Radius und dx g/cm² Dicke (Abb. 43) um die Teilchenbahn als Achse.

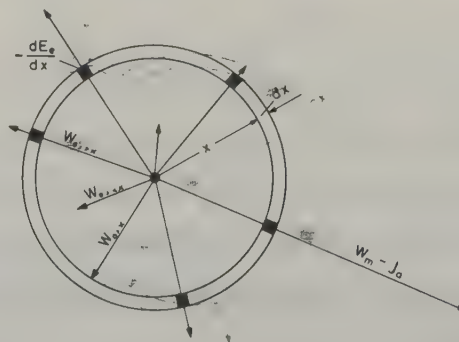


Abb. 43. Ring aus dem Zylinder von Abb. 42 mit radial wegfliegenden Delta-Elektronen verschiedener Energie W_0

Unter Verwendung der Energieverlust-Beziehungen für 1 Elektron in Abschnitt 4. und des Deltastrahlen-Energiespektrums nach 5. kann man durch Integration über einen vom Radius x abhängigen Energiebereich den Gesamtenergieverlust aller Deltastrahlen z.B. als $(dE/dV)_x$ $[\text{keV}/\mu\text{m}^3]$ in einer Zylinderschale vom Radius x und der Dicke dx berechnen. Die für alle Zylinderschalen gleiche obere Integrationsgrenze wird bestimmt durch die Maximalenergie $W_m(\beta)$ gemäß (D10). Die untere Integrationsgrenze $W_{0,x}$ ist die Energie derjenigen Deltastrahlen, deren Reichweite R gerade dem Radius x entspricht; die untere Grenze ist also für jeden Ring eine andere (Abb. 43). Mit den Ausdrücken aus (D6), (D6') und (D7') lautet demnach die Endformel:

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dV} = & Z_{\text{eff}}^2 \cdot \frac{1}{2\pi x} \sum_i \int_{W_{0,x}}^{W_m - I_{a,i}} \frac{dE_e(x, W_0)}{dx} \cdot N_{e,i} F_i(\beta, W_0) \cdot dW_0 \\ & + Z_{\text{eff}}^3 \cdot \frac{1}{2\pi x} \sum_i \int_{W_{0,x}}^{W_m - I_{a,i}} \frac{dE_e(x, W_0)}{dx} \cdot N_{e,i} G_i(\beta, W_0) \cdot dW_0 \end{aligned} \quad (\text{D11})$$

Wegen der sehr komplizierten Integranden wurden die Integrale mit Hilfe der Simpson-1/3-Regel durch Iteration numerisch gelöst. Mit zunehmenden β -Werten nahm die Konvergenz stark ab, so daß nur durch ein sukzessives Herabsetzen der Genauigkeitsanforderungen im FORTRAN-Programm Werte für $\beta = 0,5, 0,6, 0,8$ und $0,999$ bei tragbarem Rechenaufwand (einige Stunden Maschinenzeit!) zu erhalten waren. Die Ergebnisse sind im Rahmen der graphischen Darstellung (Abb. 44) trotzdem noch recht genau. Jeder Kurvenpunkt der Abb. 44 erforderte die Lösung eines Integrals gemäß (D11)!

Diskussion der Ergebnisse nach Abb. 44:

Da jeder der beiden in (D11) auftretenden Terme die entsprechenden Summen von (D7') enthält, war zu erwarten, daß die

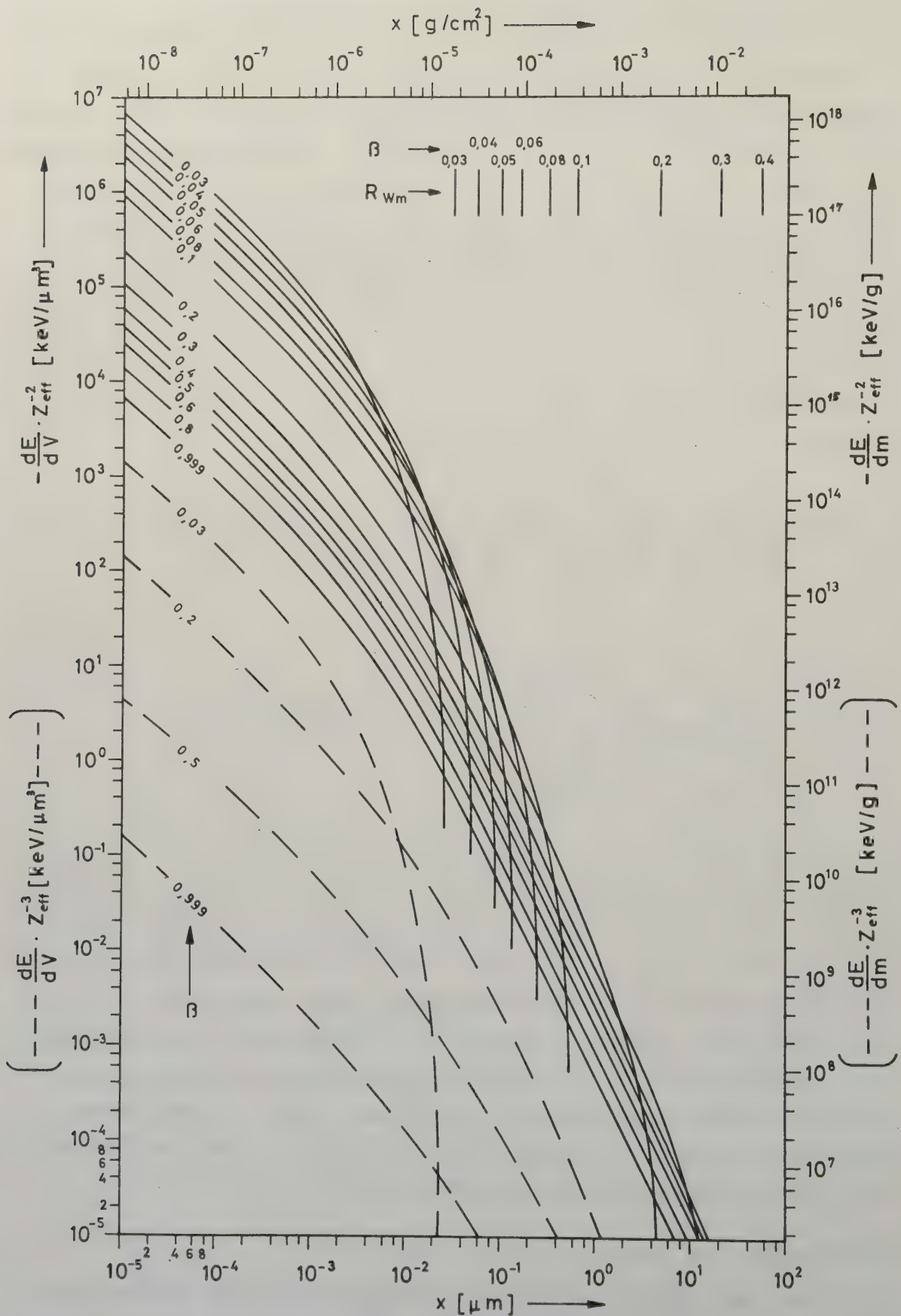


Abb. 44. Spezifischer Energieverlust der Deltastrahlen-gesamtheit eines ionisierenden Teilchens der Geschwindigkeit $v = \beta \cdot c$ in AgCl im Abstand x von der Teilchenbahn

zu den beiden Termen gehörenden Kurvenscharen in Abb. 44 auch so weit auseinanderliegen wie die vergleichbaren Kurvenscharen der Abb. 40 und 41. Das heißt: Auch für den Energieverlust der δ -Strahlen in AgCl ist in (D11) nur der 1. Term von Bedeutung. In der zugehörigen ausgezogenen Kurvenschar von Abb. 44 wurde dieser Bedeutung durch eine kleinere Schrittweite benachbarter Scharparameter β Rechnung getragen.

Wie aus den Kurven der Abb. 44 zu entnehmen ist, gilt für alle β -Werte im Bereich kleiner Abstände x von der Teilchenbahn ($x \lesssim 10 \text{ \AA}$) bei konstantem β angenähert

$$\frac{dE}{dV} \sim \frac{Z_{\text{eff}}^2}{x}, \quad (\text{D12})$$

für ausreichend hohe β -Werte gilt im Bereich großer Abstände x von der Teilchenbahn ($x \gtrsim 0,1 \text{ }\mu\text{m}$) bei konstantem β angenähert

$$\frac{dE}{dV} \sim \frac{Z_{\text{eff}}^2}{x^2} \quad (\text{D13})$$

Nimmt man einen für die Spurenbildung im AgCl erforderlichen festen Schwellenwert $(dE/dV)_S$ an, so heißt das, daß bei konstanter Teilchenenergie ($\beta = \text{const.}$) die Spurendicke $2x$ im ersten Falle (D12) proportional Z_{eff}^2 , im zweiten Falle (D13) proportional Z_{eff} ist.

Darüber hinaus erkennt man deutlich, daß für ein festgehaltenes Z_{eff} und einen sehr hohen Schwellenwert $(dE/dV)_S$ ein höherenergetisches Teilchen (großes β !) eine Spur mit kleinerer Dicke erzeugt als ein niederenergetisches Teilchen. Bei niedrig liegenden Schwellenwerten gilt für sehr hohe β -Werte das gleiche, jedoch ist für Bereiche niedriger β -Werte der umgekehrte Effekt zu erwarten, da hier die Kurven aufgrund der kleineren Maximal-Reichweite R_{W_m} der δ -Strahlen plötzlich sehr stark abfallen.

Im nächsten Abschnitt werden die hier theoretisch hergeleiteten Ergebnisse der Deltastrahlen-Theorie mit unseren experimentellen Ergebnissen verglichen. Hierbei muß darauf geachtet werden, daß ein solcher Vergleich, z.B. von berechneter und ausgemessener Teilchenspurendicke nur längs so kleiner Bahnlängen statthaft ist, innerhalb deren die Geschwindigkeit des Primärteilchens, also β , als konstant angenommen werden kann. Über die Länge der Bahn eines ionisierenden Teilchens und dessen Energieverlust vermag die Katz'sche Theorie höchstens indirekt etwas auszusagen.

III. Vergleich dekorierter Spuren mit den Ergebnissen der Deltastrahlentheorie

Es stellt sich nunmehr die Frage, ob bei dem heutigen Stand unserer experimentellen Erfahrungen in der Anwendung des Cd-dotierten AgCl-Kristalls als Detektor eine quantitative Spurenauswertung möglich ist. Die an einer Spur meßbaren Größen sind im wesentlichen die Spurenlänge L und die Spurendicke d . Ein spezieller Parameter hierbei ist die "Körnigkeit" der Spur. Daneben stellt man noch die selteneren Kernstreuungseffekte (Spurabknickungen) gegen Ende mancher Spuren und Kernreaktionen mit den Kristallbausteinen (z.B. "Sterne") fest. Die Spurenlänge kann mit Hilfe der Beziehung:

$$L = \int_{E_0}^0 \left(\frac{dE}{dl} \right)^{-1} \cdot dE$$

berechnet werden, wobei für den spezifischen Energieverlust die Bethe-Formel (95):

$$\frac{dE}{dl} = \frac{4\pi \cdot N_e \cdot e^4 \cdot Z_{\text{eff}}^2}{m_e \cdot v^2} \cdot \left[\ln \frac{2m_e v^2}{I_a} - \ln(1-\beta^2) - \beta^2 \right] \quad (D14)$$

bzw. deren theoretisch oder empirisch verbesserte Varianten (z.B. (4)) einzusetzen ist. Über den Spurendurchmesser $d = 2x$ müßten die Ergebnisse des vorigen Abschnitts Auskunft geben können.

1. Zusammenstellung einiger ausgewählter Spurenbilder

Aus der großen Zahl der Bestrahlungsexperimente wurden in Tabelle 3 einige Ergebnisse zusammengestellt. Die Daten der α -Teilchen aus der Thorium- und der Californium-Quelle sind aus (74), die Massenmaxima der Cf-Spaltprodukte (s.Sp., l.Sp.) aus (75, 76) entnommen. Die Spaltfragmente des in der Reaktorstation Garching der TU München mit thermischen Neutronen angeregten Uran 235 waren durch einen Massenseparator aussortiert worden und hatten feste Werte der

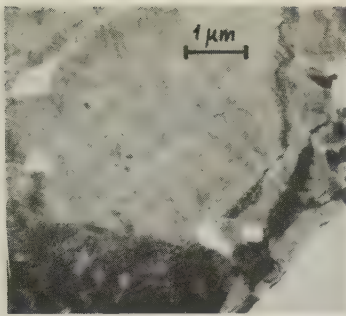
Masse A und der kinetischen Energie E. Als mögliche Strahlpartikel der Cf- und der U-Quelle wurden aus der Nuklidkarte (103) die der Masse A entsprechenden stabilen Isobare (st) ausgesucht, ferner auch noch das einem (β^-)-Zerfall unterliegende Isobar mit der jeweils niedrigsten Protonenzahl Z, das eine Halbwertszeit von mindestens einigen Sekunden aufweist. Gunther u.a. (104) geben für ^{235}U -Spaltprodukte der Masse 134 als häufigste Kernladung $Z = 52$ an. Das relativistische Geschwindigkeitsverhältnis β wurde mit Hilfe der bekannten Formel

$$\frac{E}{A} = m_{\text{u}} c_0^2 \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} - 1 \right) \quad (\text{D15})$$

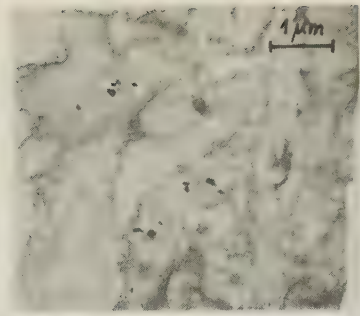
ausgerechnet. Die effektive Ladungszahl (der Ionisierungszustand) des Primärteilchens wurde mit der Formel (D8) ermittelt. Daß die Beziehung (D8) zumindest im Falle der Spaltprodukte aus Uran 235 kaum anwendbar ist, ergibt sich aus den Messungen von Konecny und Siegert (105), die für die Masse 134 der ^{235}U -Fragmente genau $Z_{\text{eff}} = 20$ ermittelten. Gemäß (D8) würde das bei der zugehörigen Energie von 75 MeV einer Protonenzahl $Z > 100$ entsprechen, was völlig unsinnig ist. Die Formel (D8) ergibt offensichtlich bei den niedrigen β -Werten falsche Effektiv-Ladungen. Bei den folgenden qualitativen Betrachtungen ist dies jedoch kaum von Belang, da die verwendeten Z_{eff}^2 -Werte aller Spaltprodukte um etwa 2 Größenordnungen über den Z_{eff}^2 -Werten der α -Teilchen liegen.

Quelle	Partikel Gruppe	Nuklid	E [MeV]	A [u]	E/A [MeV/u]	$\beta =$ v/c	Z	Z_{eff}	L [μm]	2x [μm]	Abb.	Cd in AgCl [ppm]
Th(4n)	α	He(st)	6,05	4	1,51	0,057	2	2,0	} (20) (35)	} -0,4	45 a, b	3000
		He(st)	6,09	4	1,52	0,057	2	2,0				
		He(st)	8,78	4	2,20	0,069	2	2,0				
		He(st)										
^{252}Cf 00	α	He(st)	6,07	4	1,52	0,057	2	2,0	} -20	} -0,5	49f	5000
		He(st)	6,11	4	1,53	0,057	2	2,0				
	s.Sp.		79,4	141,9	0,558	0,0345			} -6±4	} -0,35	48	600 +10Pb
		Nd(st)	79,4	142	0,558	0,0345	60	14,7				
		Ce(st)	79,4	142	0,558	0,0345	58					
		Xe(β^-)	79,4	142	0,558	0,0345	54	13,1				
	l.Sp.		103,8	106,0	0,979	0,046			} -7	} -0,5	47	600 +10Pb
		Cd(st)	103,8	106	0,979	0,046	48	16,9				
		Pd(st)	103,8	106	0,979	0,046	46	16,6				
		Tc(β^-)	103,8	106	0,979	0,046	43	16,1				
^{235}U 12 (n therm)	s.Sp. (E u.A konst.)	Ba(st)	75	134	0,560	0,0345		~20	(-6)	-0,25	46	300
		Xe(st)	75	134	0,560	0,0345	56	14,3				
		Xe(st)	75	134	0,560	0,0345	54	14,1				
		Te(β^-)	75	134	0,560	0,0345	52	13,8				
Ioneng. (Emper.)	nat. Br	Br(st)	74	79,9	0,927	0,0455	35	14,4	-7	-0,5	47	600 +10Pb

Tabelle 3: Daten der Strahlpartikel und der zugehörigen Spuren



a)



b)

Abb. 45. AgCl + 3000 ppm Cd. Querschnitte durch dekorierte Spuren von Th- α -Teilchen.
a) 1 Spur, b) 3 Spuren

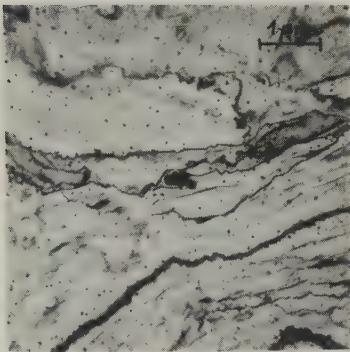


Abb. 46. AgCl + 300 ppm Cd. Bestrahlter Ultramicrotomschnitt. Spur von Uranspaltprodukt (Ag-Punkthaufen) + feines photolytisches Ag

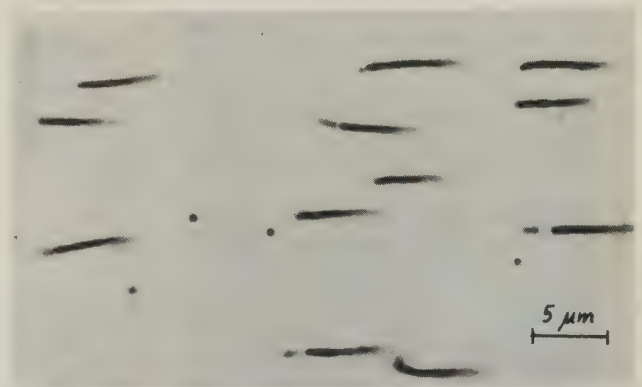


Abb. 47. AgCl + 300 ppm Cd + 10 ppm Pb. Spuren von Br-Ionen von 74 MeV

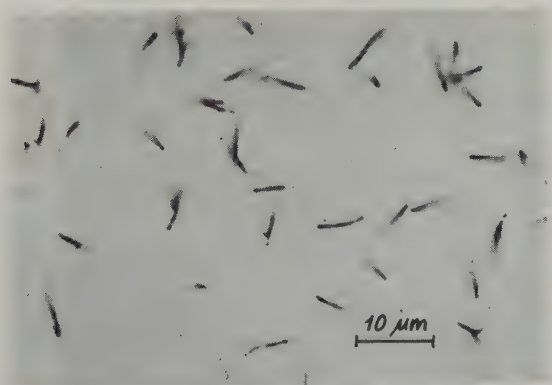


Abb. 48. AgCl + 600 ppm Cd + 10 ppm Pb. Spuren von Cf-Spaltprodukten

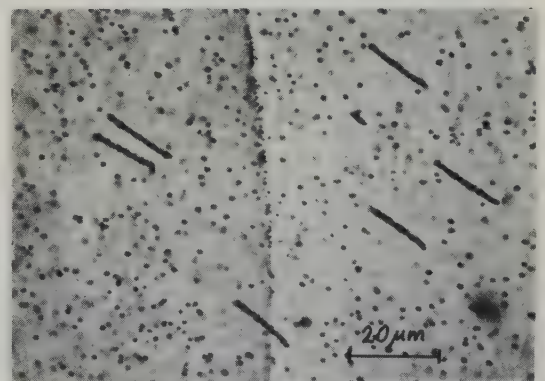
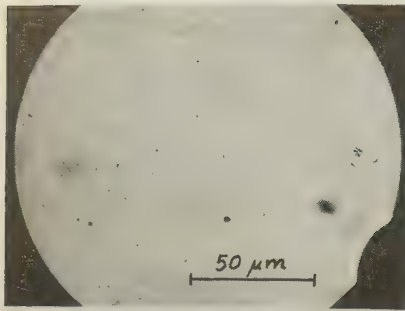
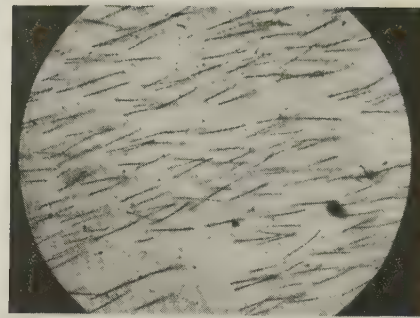


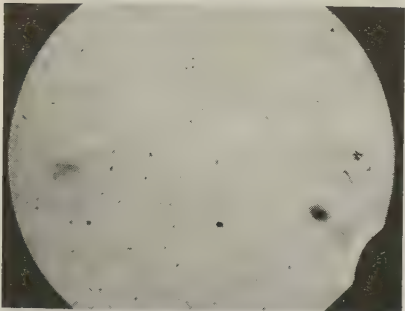
Abb. 50. AgCl + 5000 ppm Cd. Korngrenze, photolyt. Ag, Spuren von Cf- α -Teilchen mit p.o.-gap



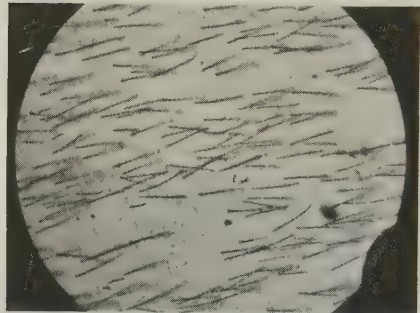
a)
1 μC



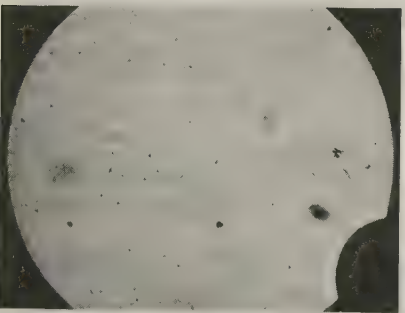
f)
20 μC
"normal"
 $\sim 0,5 \mu\text{m}$



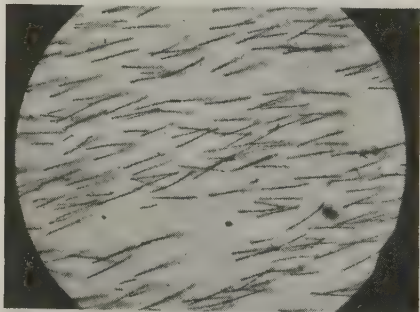
b)
1,5 μC
 $\sim 3,5 \mu\text{m}$



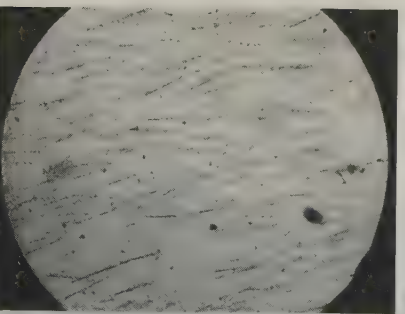
g)
40 μC
 $\sim 0,5 \mu\text{m}$



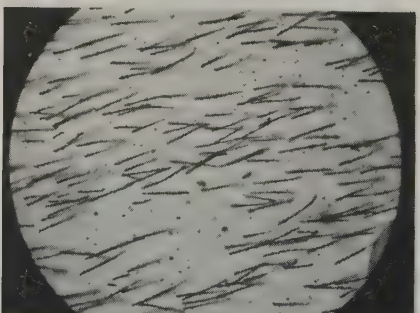
c)
3 μC
 $\sim 3,5 \mu\text{m}$



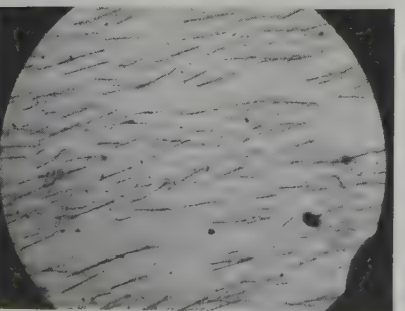
h)
100 μC
 $\sim 0,5 \mu\text{m}$



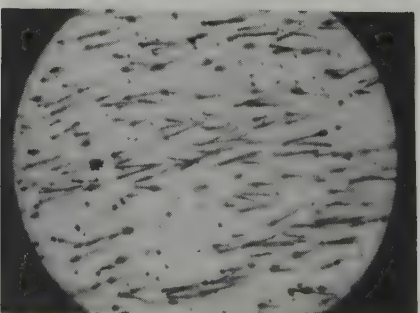
d)
5 μC
 $\sim 0,4 \mu\text{m}$



i)
300 μC
 $\sim 0,7 - 0,85 \mu\text{m}$



e)
10 μC
 $\sim 0,45 \mu\text{m}$



j)
3000 μC
 $\sim 8,5 - 1,4 \mu\text{m}$

Abb. 49. AgCl + 5000 ppm Cd. Spuren von Cf- α -Teilchen; derselbe Kristallausschnitt bei zunehmender Dekoration mit Licht von $\lambda = 408 \text{ nm}$.
Dekorationsdauer in μC , $1 \mu\text{C} \hat{=} 7,6 \cdot 10^{16} \text{ hv/cm}^2$.
Ungefähre Spurendicke in μm angegeben.

In den beiden letzten Spalten der Tabelle 3 werden mittlere Werte für Spurenlängen L und Spurendicken $d = 2x$ angegeben, wie sie durch die zugehörigen Abbildungen 45 bis 49 belegt sind. Spuren von Th- α -Teilchen in AgCl wurden von uns bereits publiziert (15, 17, 77, 78). Es werden daher an dieser Stelle in Abb. 45a, b nur elektronenmikroskopische Aufnahmen von schrägen Querschnitten durch normal-dekorierte α -Spuren in Kristallplättchen gezeigt. Sie erscheinen als Ag-Punkthäufchen. Abb. 46 zeigt die Spur eines Uran-Spaltfragments, wie sie durch Beschuß eines AgCl-Ultramikrotomschnittes erhalten wurde (ebenfalls Ag-Punkthäufchen). Der Dünnschnitt wurde in etwa wie der in Abb. 35 mit Licht dekoriert (feines statistisches Ag-print-out). Die mit Brom-Ionen aus dem Emperor-Beschleuniger des MPI für Kernphysik in Heidelberg beschossenen AgCl-Plättchen (Abb. 47) zeigen die zu erwartenden parallelen Spuren, während die Spuren in der Abb. 48 infolge der auf den Kristall gelegten Cf-Quelle alle Richtungen aufweisen.

Um bei der Beurteilung der Spurenbreite den Einfluß der Dekorationsdauer auf das Spurenbild festzustellen, haben wir die gleiche Stelle eines mit Cf- α -Teilchen bestrahlten AgCl-Kristalls nach verschiedenen Dekorationszeiten aufgenommen (Abb. 49a-j). Es wurde stets - wie bei allen im Abschnitt D.III beschriebenen Spuren - ohne elektrisches Feld und mit ungepulstem Licht der Wellenlänge $\lambda = 405...410$ nm dekoriert (s.D.I.1). Die Dekorationsdauer ist die Zeit, während der die Probe dem Dekorationslicht ausgesetzt war; sie entspricht also der von der Probe empfangenen Lichtdosis. Sie wird durch Messung der Strommenge Q in μC ermittelt, die eine Photozelle in der Dekorationsapparatur während der Belichtung liefert. Nach unserer Eichung entspricht $1 \mu C \quad 7,6 \cdot 10^{16} \text{ hv/cm}^2$ der Wellenlänge $\lambda = 408$ nm. Die 10. Dekorationsstufe entspricht einer Dekorationszeit von etwa einem Tag.

Die als "normal" bezeichnete Dekoration von $20 \mu C$ - entsprechend Abb. 49f - wurde bei allen bisherigen Untersuchungen angewandt. Aus den Aufnahmen ergibt sich, daß die Spur im

Mikroskop mit beginnender Erkennbarkeit zunächst sehr schwach erscheint, um nach längerer Dekoration mit kräftigem Kontrast hervorzutreten. Die Dickenzunahme ist hierbei minimal. Insbesondere im Bereich von 20 bis 100 μC (Abb. 49f bis 49h), was einer Dekorationszeit von etwa 10 bis 50 min entspricht, ist kaum eine Veränderung an der Spur zu erkennen. Dieses Verhalten ist für die Praxis sehr günstig. Erst bei stärkerer "Überdekoration" nimmt die Spurendicke weiter zu, ferner beginnen vorher kaum sichtbare print-out-Körner stark zu wachsen. Nach der letzten Dekorationsstufe (Abb. 49j) waren schließlich die Spuren meist stückweise durch sehr starkes print-out verdickt, besonders häufig an den Enden, so daß die Spuren sehr oft Kaulquappengestalt annehmen. Ein auf diese Weise überdekoriertes AgCl:Cd-Detektor ist selbstverständlich für eine Auswertung unbrauchbar.

2. Vergleich mit der Deltastrahlen-Theorie

Überträgt man den als Spurenradius erkennbaren Mittelwert von $x = d/2 \approx 0,2 \mu\text{m}$ in das Diagramm der Abb. 44, so stellt man fest: die Werte liegen überraschenderweise bei oder jenseits der Reichweite R_{W_m} der energiereichsten Deltastrahlen der betrachteten Teilchen ($\beta = 0,0345 \dots 0,069$); die Energieverlust-Kurven für $\beta = 0,03 \dots 0,06$ fallen i. a. schon vorher auf Null ab. Die Deltastrahlen können also niemals das sichtbare (dekorierte) Spurenvolumen radial ausfüllen. Es ist vielmehr eine latente Spur als unmittelbare Folge der Deltastrahlenwirkung anzunehmen, deren Durchmesser zunächst wesentlich kleiner als der nach der Dekoration sichtbare Durchmesser ist. Erst durch diese Annahme gelangt man in einen vernünftigen δ -Reichweitebereich, in dem die unterschiedlichen Empfindlichkeitsschwellen der mit verschiedenen Cd-Konzentrationen dotierten AgCl-Kristalle erklärbar werden. (Weiter unten wird erläutert, daß die latente Spur trotzdem einen größeren Durchmesser als $2R_{W_m}$ haben kann.)

Wie in I.2. bereits näher erläutert wurde, werden bei normaler Dekoration etwa bei 400 ppm Cd-Zusatz alle Spuren der

Cf-Spaltprodukte, jedoch keine der Cf- α -Teilchen dekoriert, ab 3000 ppm Cd-Zusatz dagegen werden Spuren sowohl der α -Teilchen als auch der Spaltprodukte dekoriert. Dieser Unterschied kann anhand der Abb. 44 durch den entscheidenden Einfluß der stark unterschiedlichen effektiven Ladung erklärt werden (α : $Z_{\text{eff}}^2 = 4$, Sp.-Pr.: $Z_{\text{eff}}^2 \approx 250$). Im folgenden wird der Einfachheit halber für alle Teilchen ein mittlerer Wert von $\beta = 0,05$ angesetzt (Tab.3). Es sei beispielsweise für die latente Spur aller Teilchen ein Durchmesser von etwa $(2x') = 111 \text{ \AA} = 20 \text{ a}$ (Gitterkonstante $a = 5,55 \text{ \AA}$) angenommen. Nach Abb. 44 liest man beim Abstand $x' = 5,5 \cdot 10^{-3} \mu\text{m}$ einen Ordinatenwert von etwa $4000 \text{ keV}/\mu\text{m}^3$ ab. Gemäß den beiden Z_{eff} -Werten würde dann eine von den Deltastrahlen an den Kristall abzugebende Energie von $(dE/dV)_{3000} = 4 \cdot 4000 = 16 \text{ MeV}/\mu\text{m}^3$ bei 3000 ppm Cd-Zusatz zur Spurbildung ausreichen, dagegen wäre eine Energieabgabe von $(dE/dV)_{400} = 250 \cdot 4000 = 1 \text{ GeV}/\mu\text{m}^3$ bei 400 ppm Cd-Zusatz zur Erzeugung einer Spur erforderlich.

Aus Abb. 39, 41 und 44 ersieht man, daß an der Stelle x' für $\beta = 0,05$ die überwiegende Energieabgabe von Delta-Elektronen mit einer Anfangsenergie von etwa $W = 0,5 \dots 2 \text{ keV}$ herrühren dürfte. W_0 ist wegen $W_m(\beta)$ nach oben (Abb. 41, 44) wegen $R(W_0)$ nach unten (Abb. 39) begrenzt! Mit anderen Worten: Die obere Grenze ist durch die von der Teilchengeschwindigkeit abhängige Maximalenergie der Deltastrahlen gegeben, die untere Grenze ist die Energie derjenigen Deltastrahlen, deren Reichweite R der Strecke x' entspricht.

Bei $\beta = 0,05$ ist nach Abb. 41 die 1-keV-Deltastrahlenausbeute für Cf- α -Teilchen etwa $40/\mu\text{m}$, für Cf-Spaltprodukte dagegen $2500/\mu\text{m}$ Teilchenbahn. Nach Abb. 39 gibt ein 1-keV-Deltastrahl im Abstand $x' = 10a$ von der Teilchenbahnmitte etwa 20 eV Energie pro Gitterkonstante an das AgCl ab; das ist ein Wert, der bei weitem ausreicht, um Elektronen ins Leitungsband zu heben; genauer: Bis zum Abstand x' und noch darüber hinaus kann der Deltastrahl mit fast allen in seiner

Flugbahn liegenden Chlorionen des AgCl-Gitters in Wechselwirkung treten und das Valenz-Elektron abtrennen.

Es ist also aufgrund dieser Abschätzung zu verstehen, daß bei dem experimentell gegebenen β -Wert in einem Zylinder um die Teilchenbahn von etwas über $0,011 \mu\text{m}$ Durchmesser zumindest in gewissen Abschnitten der Teilchenbahn Elektronen zur Ag-Bildung lokal vorhanden sind. Da die durch die Delta-Strahlen erzeugten Elektronen auch noch aus dem genannten Zylinder hinausdiffundieren können, ist es darüberhinaus möglich, daß eine latente Silberbildung an Inseln entstehen kann, die etwa $0,1$ bis $0,2 \mu\text{m}$ von der Teilchenbahn entfernt liegen. Dies ist etwa der Höchstabstand der einzelnen Partikel einer "körnigen" Spur, wie er in den bisherigen Abbildungen dieses Abschnitts gefunden wurde. Die latente Spurenbreite kann somit - zumindest bei den vorliegenden niedrigen β -Werten - in einen Bereich um die Teilchenbahn hineinragen, den die Deltastrahlen selbst nicht mehr erreichen. Da die Diffusionslänge der letztlich für die Ag-Produktion entscheidenden Elektronen in etwa konstant ist, wird sie mit zunehmender Deltastrahlenreichweite, d.h. bei hohen β -Werten, nur noch einen unbedeutenden Korrekturfaktor darstellen. Die Auswertung der Spurenbreite müßte in diesem Falle mit Hilfe eines - ggf. modifizierten - Diagramms nach Abb. 44 unter Annahme einer Schwellenenergie $(dE/dV)_s$ möglich sein.

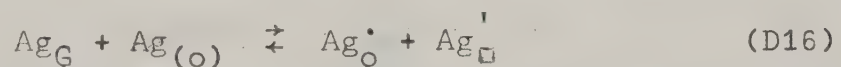
Zusammenfassend ist zu wiederholen, daß über die Zusammenhänge zwischen den experimentell gefundenen Spurendurchmessern und der Deltastrahlentheorie nach Kap. II bei Teilchengeschwindigkeiten von etwa $\beta = 0,05$ nur qualitative Angaben gemacht werden können. Bei relativistischen Teilchengeschwindigkeiten wäre jedoch ein unmittelbarer Vergleich zwischen Theorie und Experiment durchaus denkbar.

IV. Vorstellungen zur Spurentstehung im AgCl: Cd-Detektor

Unter bestimmten Voraussetzungen führt die Bestrahlung von Silberhalogenidkristallen durch ein Zusammenwirken von elektronischen und ionischen Prozessen zur Ausbildung eines latenten oder auch eines sichtbaren Bildes. Im Falle des AgCl-Spuredetektors müssen sowohl beim Teilchenbeschuß als auch bei der Dekoration mit Licht die beiden notwendigen Prozesse ausgelöst werden. Die Ergebnisse unserer Detektor-experimente am AgCl: Cd-Kristall zeigten, daß sowohl die Erzeugung eines - über lange Zeit stabilen - latenten Spurenbildes als auch dessen Sichtbarmachung unter gewissen Voraussetzungen möglich ist.

1. Fehlordnung im Cd-dotierten AgCl-Kristall

Um den Prozeßablauf im AgCl: Cd-Gitter erörtern zu können, ist es zunächst wichtig, über die im AgCl bei 20°C vorhandene Frenkelfehlordnung und deren Beeinflussung durch a) 400 ppm Cd-Zusatz bzw. b) 3000 ppm Cd-Zusatz einige quantitative Aussagen zu machen. Das thermische Reaktionsgleichgewicht der Frenkel-Eigenfehlordnung lautet für AgCl



Hierbei bedeutet $\text{Ag}_G = \text{Ag}^+$ auf Gitterplatz (= 1),

$\text{Ag}_{(O)} =$ leerer Ag-Zwischengitterplatz (= 2),

$\text{Ag}_O^{\bullet} = \text{Ag}^+$ auf Zwischengitterplatz (x_O),

$\text{Ag}_G' =$ Ag-Gitter-Leerstelle (x_G).

Die Angaben in Klammern im Anschluß an die jeweilige vorstehende Definition bezeichnen die zugehörigen Gitter-(Mol)-Konzentrationen. Die relative Ladung eines Teilchens gegenüber dem neutralen Gitter wird mit (•) = einfach positiv und mit (') = einfach negativ bezeichnet. Die Zeichen (+) und (-) bezeichnen den absoluten Ladungszustand.

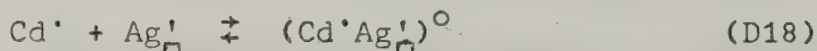
Da die Frenkel-Defekt-Konzentration bei Raumtemperatur sehr klein ist, d.h. das Gleichgewicht in (D16) weitgehend nach links verschoben ist, können die Gitterkonzentrationen der linken Seite als konstant angesehen werden. Man erhält somit

zu (D16) ein aus der statistischen Thermodynamik ableitbares Massenwirkungsgesetz:

$$x_o \cdot x_{\square} = 2 \cdot \exp\left(-\frac{H-TS}{kT}\right) = K_F(T) \quad (D17)$$

Hierin sind - mit den Werten von Müller (106) - H die Enthalpie (= 1,25 eV) und S die Entropie ($S/k = 6$) für die Bildung eines Frenkelpaares. Für Raumtemperatur (293 °K) errechnet man $x_o \cdot x_{\square} = 25,7 \cdot 10^{-16}$. Für ideal reine Kristalle ist danach $x_o = x_{\square} = 5,07 \cdot 10^{-8}$. Mit den Werten H und S von Abbink und Martin (107) ergeben sich etwa um eine Größenordnung kleinere Konzentrationen. Die Gleichung (D17) gilt auch für dotierte Kristalle. $Cd^{2+} = Cd'$ wird bis zur Löslichkeitsgrenze (einige 100 ppm (49)) auf einen Ag-Gitterplatz eingebaut. Aus Elektroneutralitätsgründen entstehen ebenso viele zusätzliche $Ag'_{\square}$ wie Cd' vorhanden sind. Die Konzentration x_o der Zwischengitterionen wird entsprechend (D17) zurückgedrängt.

Die durch Cd' erzeugten Lücken sind nicht alle frei beweglich. Sie assoziieren z.T. mit dem Cd' zu Dipol-Komplexen gemäß der Reaktionsgleichung:



Bezeichnet man mit c die Konzentration der Cd-Dotierung, mit c^* die der freien Cd' , mit x^* die der freien $Ag'_{\square}$ und mit x_a die der Komplexe (Assoziante), so kann man einen Assoziationsgrad $\alpha = x_a/c$ definieren. Danach ist $c^* = x^* = (1-\alpha) \cdot c$, und es gilt wieder ein Massenwirkungsgesetz:

$$\frac{c^* \cdot x^*}{x_a} = \frac{(1-\alpha)^2}{\alpha} = \frac{1}{c \cdot z} \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) = K_a(T) \quad (D19)$$

Mit den Müllerschen Werten (106) $E_a = 0,27$ eV (Assoziationsenergie) und $z \approx 0,15$ (reiner empirischer Rechenwert, nicht als Koordinationszahl zu verstehen) kann man aus (D19) den Assoziationsgrad errechnen. In Tabelle 4 sind unter Zuhilfenahme der Molekülzahldichte N_M und der Gitterkonstante a aus

Abschnitt II.2. einige Rechenergebnisse aus (D17) und (D19) mit anderen wichtigen Ergebnissen für AgCl-Kristalle mit 400 und 3000 ppm Cd-Dotierung zusammengestellt. Die Werte sind stark gerundet. Sie wurden unter der Annahme berechnet, als lägen echte Substitutionsmischkristalle vor. Dies trifft allerdings nur für 400 ppm Cd-Zusatz zu, dagegen nicht mehr für 3000 ppm. Da die Löslichkeitsgrenze von Cd in AgCl, wie früher schon erwähnt, bei einigen 100 ppm Cd liegt, sind die Angaben für 3000 ppm Cd als grobe Orientierungswerte anzusehen. Die bei 3000 ppm Cd-Zusatz gleichzeitig zu erwartenden Phasen-Ausscheidungen der verschiedensten Stufen sind quantitativ noch nicht erfaßbar.

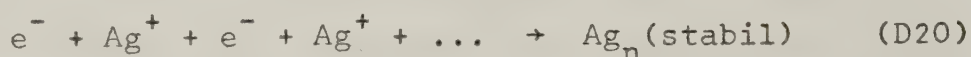
Cd'-Dotierung	$c = x_{\square}$	ppm	400	3000
Ag' _□ -Dichte	$N_{\square} = N_c$	$1/\mu\text{m}^3$	$9,4 \cdot 10^6$	$7 \cdot 10^7$
Ag' _□ -Dichte, linear	$N_{\square 1} = N_{c1}$	$1/\mu\text{m}$	210	410
Abstand Ag' _□ -Ag' _□	$l_{\square} = l_c$	Å	47	23
" " "	$l_{\square} = l_c$	a	8,5	4
Ag' _O -Dichte	N_o	$1/\mu\text{m}^3$	0,15	0,02
Ag' _O -Dichte, linear	N_{o1}	$1/\mu\text{m}$	0,5	0,25
Abstand Ag' _O -Ag' _O	l_o	μm	2	4
" " "	l_o	a	3600	7000
Assoziationsgrad	α	%	55	80

Tabelle 4. Fehlstellen in AgCl:Cd-Kristallen bei 20 °C

Bei den angegebenen Werten ist die Assoziation, deren Grad aus der letzten Zeile der Tabelle ersichtlich ist, noch nicht berücksichtigt.

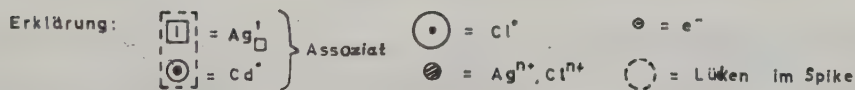
2. Überlegungen zum Primärprozeß

Die experimentellen Ergebnisse lassen folgende Schlüsse zu:
Ein in einem AgCl: Cd-Kristall abgebremstes schweres Teilchen ist Ursache für ein latentes Spurenbild, d.h. es läuft an oder in unmittelbarer Nachbarschaft der Spur ein photographischer Elementarprozeß ab:



Dies ist rein formal ausgedrückt und sagt noch nichts über einen detaillierten atomaren Keimbildungs-Mechanismus an Störzentren aus, wie er in den unterschiedlichen Theorien von Gurney u. Mott (108), Mitchell (109) und Malinowski u. Georgiev (110, 111) diskutiert werden. Es wird hier ferner sicher auch die von der Hochintensitätsbelichtung her bekannte spontane Silberabscheidung im Sinne von Matejec (z.B. (112)) eine wesentlichen Rolle spielen. Die latente Spur ist unter gewissen Voraussetzungen durch Licht der Wellenlänge $\lambda = 408 \text{ nm}$ im Sinne einer Fortsetzung von (D20) dekorierbar. Die Teilchenspur als Dekorationszentrum ist i.a. deutlich bevorzugt gegenüber anderen Zentren (z.B. Korngrenzen (Abb. 50), Versetzungen u.ä.)

Abb. 51 zeigt die $\{100\}$ -Ebene eines AgCl-Kristalles. Die Ionenradien für Ag^{+} (1,13 Å), Cl^{-} (1,81 Å), Cd^{2+} (1,03 Å) nach Goldschmidt (113) sind für zwei Elementarzellen links unten maßstäblich eingetragen. Der Übersichtlichkeit halber wurden sonst diese 3 Ionen nur mit ihrer halben Größe gezeichnet. Es seien hier noch die zugehörigen Atomradien nach (113) angegeben: Ag (1,44 Å), Cl (0,91 Å), Cd (1,48 Å). In Abb. 51 ist schematisch der momentane Zustand angegeben, wie er sich unmittelbar nach dem Teilchendurchgang darbieten dürfte: Die Gitterbausteine in der Teilchenbahn wurden ionisiert und sind nach dem explosion-spike-Mechanismus auf Zwischengitterplätze gedrängt; Delta-Elektronen (es sind nur 4 gezeichnet!) haben Sekundärelektronen ausgelöst.



Die latente Spur hat sich noch nicht gebildet. Im Sinne der Theorie des latenten Bildes hält Abb. 51 den sogenannten Primärprozeß fest.

Die von einem Primärteilchen hinterlassene latente Spur könnte je nach dem Ort, an dem sie sich in bezug auf die Bahn des Teilchens gebildet hat, durch folgende Prozesse entstanden sein.

3. Ag-Keime im Core

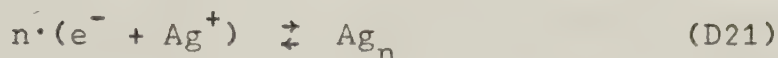
Das ionisierende Teilchen produziert gegenüber dem Gitter einfach und mehrfach positiv geladene Silber- und Chlor-Ionen, die sich aufgrund des explosion-spike-Mechanismus (81) stark abstoßen und auf verschiedene Weise in das Zwischengitter eingebaut werden. Aus energetischen Gründen ist zu erwarten, daß die Mehrzahl der im Spike gebildeten Teilchen Cl-Atome und (Ag^+) - bzw. (Ag^{2+}) -Ionen sind. Aufgrund der Coulomb-Kraft werden sich die am höchsten ionisierten Teilchen am weitesten vom Core-Zentrum entfernen. Die Spike-Teilchen hinterlassen nach ihrem Wegfliegen einen schlauchartigen, verdünnten Kristallbereich in der AgCl-Matrix. Er enthält Silber- und Chlor-Lücken. Die Umgebung des Schlauches ist mechanisch stark gestört. Nach sehr kurzer Zeit wird sich eine zumindest metastabile Gleichgewichtslage der Gitterbausteine einstellen. Es wird sich hierbei um einen linearen Gitterfehler handeln, der je nach Teilchen-Einschußrichtung jede beliebige kristallographische Richtung einnehmen kann.

Die weggeschleuderten Spike-Ionen werden sehr schnell aus ihrer Umgebung Elektronen einfangen. Diese Elektronen können sein: δ -Elektronen kurzer Reichweite, durch δ -Elektronen ausgelöste Sekundärelektronen und noch an Gitterbausteine gebundene Elektronen, insbesondere die Valenzelektronen der (Cl^-) -Ionen. In der Umgebung eines hochionisierten Spike-Ions werden nach- bzw. nebeneinander verschiedene Mechanismen von Ionen-Platzwechselfvorgängen, Elektronenaustausch-, Elektronen- und Defektelektronen-Wanderungsvorgängen ablaufen, bis sich ein mehr oder weniger stabiler Endzustand eingestellt hat. Man kann danach das Core-Gebiet, d.h. einen Zylinder um die Teilchenbahn von wenigen Gitterabständen Durchmesser, in zwei Bereiche unterteilen:

a) Core-Zentrum

Dieser innerste Bereich besteht aus dem "relaxierten Schlauch" und den unmittelbar benachbarten aufgelockerten Gitterionen.

In ihm wird eine latente Spur, bestehend aus Ag-Partikeln, durch spontane Keimbildung entstehen können. Das heißt, in der Gleichung

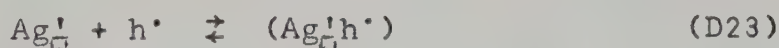


ist aufgrund der Übersättigung an Elektronen (δ -Elektronen kürzester Reichweite und Sekundärelektronen) sowie an locker im Gitter gebundenen (Ag^+)-Ionen das Gleichgewicht nach rechts verschoben. Da im reinen AgCl-Kristall nach unserer Erfahrung keine Ag-Spur entsteht, reicht dieser spontane Bildungsmechanismus offensichtlich nicht aus, um genügend große, d.h. stabile Ag_n -Keime zu erzeugen (n sollte nach Angabe verschiedener Autoren, z.B. nach Matejec (112), ≥ 4 sein). Der Kristall muß vielmehr je nach dem Ionisierungsvermögen der nachzuweisenden Teilchen eine bestimmte Menge Cadmium enthalten. Ferner ist es, wie wir neuerdings festgestellt haben, für eine Spurbildung erforderlich, den Kristall während des Teilchenbeschusses schwach zu belichten. Offensichtlich reichen hierbei Wellenlängen des sichtbaren Spektrums aus; Untersuchungen sind noch im Gange.

Die Defektelektronen, welche bei dem Elementarvorgang



entstehen, können, wie Malinowski (110) nachwies, von Ag-Lücken eingefangen werden:



Der entstandene "Komplex" ($V1$ -Zentrum im Sinne von Seitz (114)) kann wegdiffundieren. Da eine Cd' -Dotierung die Ag-Lücken-Konzentration stark erhöht, wird eine Rekombination der für die Spurbildung erforderlichen Elektronen mit den Defektelektronen erschwert. Die nunmehr längere Lebensdauer der Elektronen begünstigt die Entstehung der latenten Spur. Die darüber hinaus noch erforderliche Zusatzbelichtung während des Teilchenbeschusses könnte zusätzlich Elektronen aus flachen Fallen verschiedenster Art befreien. Es wäre

zum Beispiel denkbar, daß viele der sich spontan bildenden Vorkerne von der Art Ag , Ag_2 (flache Elektronenfallen, schwache Akzeptoren) aufgrund der Zusatzbelichtung sofort wieder dissoziiert werden, so daß schließlich nur wenige echte - stabile - Kerne Ag_4 , Ag_5 usw. (tiefe Fallen, starke Akzeptoren) zurückbleiben.

Daß sich gerade Cadmium unter den zweiwertigen Dotierungselementen für die Spurbildung so günstig auswirkt, könnte eng mit folgenden Eigenschaften zusammenhängen: Cd^{2+} besitzt einen mit dem des Ag^+ vergleichbaren Ionenradius (s.o.), Cd steht neben dem Ag im Periodensystem und es ist wesentlich edler als z.B. die zweiwertigen Erdalkalimetalle. Cd^{2+} wird wahrscheinlich im AgCl auch als Elektronenfalle wirken (Z1-Zentrum nach Seitz (115)) und durch totale Reduktion zu Cd -Metall als ein die Keimbildung förderndes Zentrum die metallische - im übrigen vorwiegend aus Ag bestehende - Teilchenspur mit aufbauen helfen. Die Elektronenempfindlichkeit des CdCl_2 wurde bereits in Abschnitt III.1. nachgewiesen.

b) Äußerer Core-Bereich

Dieser Bereich soll die Zylinderschale umfassen, in der die aus dem Core-Zentrum geschleuderten Spike-Ionen zur Ruhe kommen und durch Elektroneneinfang einen gegenüber dem Gitter neutralen Ladungszustand einnehmen. Aufgrund des großen Elektronenbedarfs der z.T. hochionisierten Teilchen dürfte in diesem Bereich eine Silberkeimbildung unwahrscheinlich sein. Eine hohe Silberlückenkonzentration und die o.g. Zusatzbelichtung wird zu einer beschleunigten "Neutralisierung" der Spike-Ionen beitragen.

4. Ag-Kerne außerhalb des Cores

In größerer Entfernung, möglicherweise etwa ab 8 Gitterkonstanten von der Teilchenbahn, wird die Silberkeimbildung überwiegend durch die δ -Strahlen verursacht. Infolge einer starken lokalen Übersättigung an Sekundärelektronen ist auch

hier spontane Keimbildung zu erwarten, obwohl praktisch keine thermischen Zwischengitterionen (Ag_O') vorhanden sind. Es besteht allerdings die Möglichkeit einer lokalen Ag_O' -Bildung infolge einer Art explosion-spike-Wirkung durch hochenergetische Deltaelektronen. Parallel dazu könnten in dem von den Deltastrahlen ausgefüllten Zylinderring stabile Ag-Keime an unbeabsichtigt vorhandenen "Sensibilisationszentren" entstehen. Wegen der sehr hohen Dichte der Silberlücken (Tab.4) dürfte daher die ionische Komponente der Ag-Keimbildung über Ag' -Wanderung ablaufen. Wie bereits in Abschnitt III. erläutert, entstehen offensichtlich auch Ag-Keime in einem Zylinderring um die Teilchenbahn außerhalb der Reichweite der Deltastrahlen (Abb.45). Hier ist die Ag-Keimbildung durch Zusammenwirkung von zahlreichen diffundierenden Elektronen (aus dem Deltastrahlen-Reichweitebereich) mit (Ag^+)-Ionen über Lückenwanderung zu erklären. Die dazu notwendigen Keimzentren werden wiederum durch unbeabsichtigte statistisch verteilte Sensibilisationszentren, sowie insbesondere bei hohen Cd-Dotierungen (z.B. bei 5000 ppm Cd) durch Cd-Agglomerate zur Verfügung stehen. Die "Körnigkeit" einer Spur beweist, daß diese Zentren nicht sehr dicht liegen, insbesondere bei hohen Cd-Dotierungen und niedrigen Ionisationsquerschnitten - z.B. bei α -Teilchen, bzw. bei schweren Teilchen im Bereich des Spurenanfangs - ist die Spur stark aufgelockert. Je weiter man sich vom Teilchenbahnzentrum entfernt, um so geringer ist die Dichte der noch als Keimzentren zur Wirkung kommenden Sensibilisationszentren.

Der Einfluß der Cd-Dotierung und der Zusatzbelichtung während des Teilchenbeschusses ist auch bei der Ag-Keimbildung außerhalb des Core-Bereiches der gleiche wie innerhalb, gemäß Abschnitt 1.

5. Dekorationsmechanismus

Wie mehrfach erwähnt, wird die Spur erst durch eine nachträgliche Belichtung sichtbar. Dieser Schritt entspricht formal der photographischen Entwicklung. Bei der "normalen" Dekorationsbelichtung von $1,5 \cdot 10^{18} \text{ hv/cm}^2$ bei $\lambda = 408 \text{ nm}$ und einer Absorption von etwa 30 % im AgCl-Plättchen (Abb.20) werden etwa $2 \cdot 10^7$ Quanten/ μm^3 absorbiert. Gemäß Abschnitt II.2. kommt somit 1 Lichtquant auf 1000 (Cl^-)-Ionen. Ein großer Teil dieser recht hohen Photonendichte wird Photoelektronen produzieren.

Durch Einfang dieser Elektronen an den stabilen Keimen der latenten Spur werden unter Hinzutritt von Ag^+ sichtbare Ag-Partikel erzeugt. Die Konzentration der infolge der Cd-Dotierung vorhandenen Ag-Lücken liegt etwa in der Größenordnung der Photoelektronenkonzentration. Die Lücken werden hier sowohl zur (Ag^+)-Wanderung beitragen, wie auch als Defektelektronenfänger dienen. In der Abb. 50 ist zu erkennen, daß in gewissem Umfang auch Korngrenzen dekoriert werden. In der Regel hat die Teilchenspur Priorität vor einer Korngrenze, wie an der Spur in der Mitte des Bildes zu erkennen ist. Die Priorität einer Teilchenspur als Keimbildungs- und Dekorationszentrum gegenüber statistisch verteilten print-out-Zentren ist in der Abb. 50 ebenfalls deutlich zu erkennen. Im allgemeinen stellt man fest, daß mit zunehmender Spurendichte die print-out-Dichte abnimmt. Um die Spuren erkennt man meist print-out-freie Zonen (Abb. 50), die durch eine Anreicherung von Defektelektronen und eine Verarmung an freien Lücken zu erklären ist.

ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Arbeit ist ein Beitrag zur Entwicklung eines Präzipitationsdetektors zum visuellen Nachweis von Spuren ionisierender Teilchen. Sie befaßt sich mit der Herstellung und mit überwiegend festkörperphysikalischen Untersuchungen von dotierten Silberchloridkristallen, die wir als Spurendetektor verwenden.

Nach einem Überblick über die AgCl-Kristallzüchtung wird unsere Bridgman-Anlage beschrieben, die es gestattet, Einkristall-Zylinder bis etwa 100 g herzustellen. Besonders eingehend wird ein von uns entwickeltes modifiziertes Mitchell-Verfahren zur Serien-Züchtung von Kristallplättchen behandelt. In einem Züchtgang können bis 2×10 verschieden dotierte AgCl-Plättchen der Größe $25 \times 15 \times 0,3 \text{ mm}^3$ hergestellt werden.

Ritzhärtemessungen an einem reinen orientierten Bridgman-AgCl-Kristall lassen anhand von gewonnenen Härtediagrammen auf ausgewählten kristallographischen Ebenen dem NaCl verwandte Anisotropien erkennen. Diese sind allerdings wegen der duktilen Beschaffenheit des AgCl bei Raumtemperatur nicht so stark ausgeprägt. An polykristallinen Kristallplättchen wird der Einfluß der Cadmium-Dotierung auf die Ritzhärte H von AgCl-Kristallen untersucht, es wird bis zu Konzentrationen $c = 1 \%$ eine Abhängigkeit der Art $H \sim c^{1/7}$ gefunden.

Bei Raumtemperatur wird der Einfluß der Cd-Dotierung auf die optische Absorption der AgCl-Kristalle untersucht. Eine Verschiebung der Absorptionskante kann nicht festgestellt werden. Dagegen ist der langwellige Ausläufer mit zunehmender Cd-Dotierung stärker angehoben. Dieser Effekt wird nach Überschreitung der Löslichkeitsgrenze (einige 100 ppm Cd), insbesondere bei 3000 ppm Cd sehr deutlich. Das Ergebnis wird mit einer z.T. auf Streueffekten an Cd-Agglomeraten beruhenden Extinktion gedeutet.

Mit Hilfe von elektronenmikroskopischen Untersuchungen an CdCl_2 -Fällungen wird die Umwandlung von $\text{CdCl}_2 \cdot 2,5\text{H}_2\text{O}$ in

CdCl_2 und die Reduktion von CdCl_2 zu Cd-Metall bei Elektronenbeschuß anhand von Elektronenfeinbereichsbeugungs-Diagrammen nachgewiesen. An Ultramikrotomschnitten von Kristallplättchen werden die Reduktionsvorgänge an $\text{AgCl}:\text{Cd}$ -Kristallen bei Elektronenbeschuß untersucht. Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit der Ag-Entstehung von der Cd-Konzentration. Härte-, optische und elektronenmikroskopische Untersuchungen lassen erkennen, daß bis 1 % Cd-Zusatz trotz Überschreitung der Löslichkeitsgrenze offensichtlich noch keine echte Abscheidung einer CdCl_2 -Phase vorliegt. Der Übergang ist vielmehr fließend und erfolgt wahrscheinlich über Nah- und Fernordnungsbereiche, wobei eine Überstrukturbildung nicht auszuschließen ist.

Nach einer kurzen Darstellung des Testverfahrens (Teilchenbestrahlung; Dekorationsmethode mit Lichtstrahlung) werden die Ergebnisse der Untersuchung dotierter AgCl -Kristalle auf ihre Eignung als Spurendetektoren zusammengestellt. Von den in verschiedenen Konzentrationen beigegebenen 32 Elementen haben offensichtlich nur wenige die Eigenschaft, eine Spurendekoration im AgCl -Kristall zu begünstigen. Als optimal wurde Cd, Cd+Pb und Mn gefunden. Durch weitere verbesserte Untersuchungsmethoden soll geklärt werden, ob auch noch andere Dotierungselemente evtl. zu günstigen Ergebnissen führen.

Zur quantitativen Spurenauswertung werden die Ansätze von Kobetich und Katz (82, 96) über die Deltastrahlen-Theorie herangezogen. Die Übertragung der Theorie auf den AgCl -Kristall erforderte umfangreiche numerische Berechnungen, die mit Hilfe von selbst aufgestellten FORTRAN-Programmen auf dem Computer durchgeführt wurden. Die wichtigsten Ergebnisse werden in 3 Diagrammen gezeigt: Der spezifische Energieverlust von monoenergetischen Elektronen bei senkrechter Inzidenz; ferner das beim Durchgang schwerer Teilchen entstandene Deltastrahlen-Energie-Spektrum und der Energieverlust der Deltastrahlengesamtheit um die Teilchenbahn.

In einem Vergleich dekorierter Spuren mit den Ergebnissen der Deltastrahlentheorie wird eine halb-quantitative Erklärung für den Spurendurchmesser gegeben. Exakte quantitative Aussagen sind offensichtlich bei unseren Beschußexperimenten mit Teilchen von $\beta = v/c_0 \approx 0,05$ nicht möglich; dagegen könnte wahrscheinlich diese Theorie z.B. bei relativistischen Teilchen mit Erfolg zur Spurenauswertung herangezogen werden.

Es werden schließlich Vorstellungen und Modelle über einen Mechanismus der Spurentstehung (Ag-Bildung, Präzipitation) in AgCl: Cd-Kristallen längs der Teilchenbahn entwickelt. Dabei wird unterschieden zwischen Ag-Keimen im Core-Zentrum, im äußeren Core-Bereich und im Bereich außerhalb des Cores. Für die Ag-Bildung im Core-Zentrum reicht eine Betrachtung, die nur von der Deltastrahlen-Theorie Gebrauch macht, nicht aus. Hier muß vielmehr der explosion-spike-Mechanismus von Fleischer u.a. (81) zur Erklärung mit herangezogen werden. Mit Hilfe von Fehlstellen-Betrachtungen und den Theorien des photographischen Elementarprozesses wird eine plausible Erklärung der Spurentstehung gegeben. Danach sind stabile Ag-Keime sowohl im Core-Zentrum als auch im Bereich außerhalb des Cores - dem eigentlichen Wirkungsbereich der Deltastrahlen - möglich, nicht dagegen im äußeren Core-Bereich.

Die vorliegende Abhandlung wird als Bericht IKF-28 (116) publiziert.

L I T E R A T U R

- (1) W.M. Barkas: Nuclear Research Emulsions.
(Academic Press Inc., New York, 1963)
- (2) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, E.L. Hubbard:
Phys.Rev. 133A(1964)1443
- (3) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, E.L. Hubbard:
Phys.Rev. 156(1967)353
- (4) E.V. Benton, R.P. Henke: Nucl.Instr.Meth. 67(1969)87
- (5) C. Childs, L. Slifkin: Bull.Amer.Phys.Soc. 6(1961)52
- (6) C. Childs, L. Slifkin: Phys.Rev.Letters 9(1962)354
- (7) D.R. Tuerpe, T.G. Knorr: J.Appl.Phys. 33(1962)3257
- (8) R. Schmitt, in P. Cüer, R. Schmitt (Hrsg.):
Réunion de travail sur l'enregistrement des traces de
particules chargées dans les cristaux. (Centre de
Recherches Nucléaires C.N.R.S. de Strasbourg, 1963)
- (9) J.R. Haynes, W. Shokley: Phys.Rev. 82(1951)935
- (10) C. Childs, L. Slifkin: Brit.J.Appl.Phys. 16(1965)771
- (11) G. Haase, E. Schopper, in M. della Corte (Hrsg.):
Proc. 6th Int. Conf. on Nuclear Photography,
Florence 1966. (ZEPI, Rom, 1967), S.283
- (12) G. Haase, E. Schopper, in A. Bishay (Hrsg.):
Proc. Cairo Solid State Conf. on Interaction of
Radiation with Solids, Amer. Univ. Cairo 1966.
(Plenum Press, New York, 1967), S.417
- (13) K. Breuer, G. Haase, E. Schopper:
Brit.J.Appl.Phys. 18(1967)1824
- (14) K. Breuer, G. Haase, E. Schopper, F. Zörgiebel:
Verhandl.DPG 3(1968)302
- (15) K. Breuer, E. Schopper, G. Haase, F. Zörgiebel:
Photogr.Korresp. 104(1968)66
- (16) E. Schopper: Abstracts of Papers, 158th Nat. Meet. Amer.
Chem. Soc., New York 1969; Ref.Nucl. 21
- (17) G. Haase, E. Schopper, G. Henig, J.-U. Schott,
F. Zörgiebel:
7th Int. Coll. on Corpuscular Photography and Visual
Solid Detectors, Barcelona 1970 (im Druck)
- (18) G. Haase, E. Schopper, G. Henig, E. Palm, J.-U. Schott,
F. Zörgiebel:
7th Int. Coll. on Corpuscular Photography and Visual
Solid Detectors, Barcelona 1970 (im Druck)
- (19) S. Kyropoulos: Z.anorg.allg.Chemie 154(1926)308
- (20) J. Czochralski: Z.phys.Chemie 92(1918)219
- (21) P. Bridgman: Proc.Amer.Acad.Arts Sci. 60(1925)306

- (22) D. Stockbarger: Rev.Sci.Instr. 7(1936)133
- (23) N.R. Nail, F. Moser, P.E. Goddard, F. Urbach: Rev.Sci.Instr. 28(1957)275
- (24) P.V. McD. Clark, J.W. Mitchell: J.Photogr.Sci. 4(1956)1
- (25) C. Bery, W. West, W. Moser, in J.J. Gilman (Hrsg.): The Art and Science of Growing Crystals (John Wiley & Sons Inc., New York-London, 1963), S.214
- (26) W.G. Burgers, T.K. Hiok: Physica 11(1946)353
- (27) R.G. De Lange, W.G. Burgers: Proc.K.Ned.Akad.Wetensch. B 64(1961)346
- (28) J. Fritsch: Diplomarbeit, Frankfurt a.M. 1968
- (29) M. Schäfer: Diplomarbeit, Frankfurt a.M. 1970
- (30) W. Polzin: Diplomarbeit, Frankfurt a.M. 1970
- (31) F. Moser, D. Burnham, H. Tippins: J.Appl.Phys. 32(1961)48
- (32) F. Zörgiebel, G. Haase, G. Henig, E. Schopper, J.-U. Schott: Z.angew.Phys. 30(1970)316
- (33) G. Haase, E. Schopper, G. Henig, J.-U. Schott, F. Zörgiebel:
7th Int. Coll. on Corpuscular Photography and Visual Solid Detectors, Barcelona 1970 (im Druck)
- (34) F. Zörgiebel, R. Clasen: DFG-Kolloquium "Kristallzucht", München 1970 (im Druck)
- (35) C. Childs, L. Slifkin: J.Phys.Chem.Sol. 12(1959)119
- (36) J. Eggers, G. Haase, R. Matejec:
Physikalische und chemische Eigenschaften der Silberhalogenide und des Silbers (Akad. Verlags-Ges., Frankfurt a.M., 1968)
- (37) W.E. Forsythe (Hrsg.): Smithsonian Tables.
(Smithsonian Institution, Washington 1954), S.228
- (38) H. Winter: Dissertation, Frankfurt a.M. 1959
- (39) E. Schmid, W. Boas:
Kristallplastizität (Julius Springer, Berlin, 1935), S.262
- (40) J.F. Nye: Proc.Roy.Soc. London A 198(1949)190 und A 200(1949)47
- (41) F. Granzer, K.-F. Gütlich, G. Haase, W. Saul: Naturwiss. 52(1965)558
- (42) S.S. Gorbach, V.Yu. Markovskii, M.P. Shaskol'skaya: Sov.Phys.Crystallogr. 13(1969)616
- (43) Š. Kupča: phys.stat.sol. 29(1968)K15
- (44) R.L. Fleischer: Acta Met. 10(1962)835
- (45) W.J. Luhmann, A.E. Gorum: Acta Met. 7(1959)685
- (46) A. Parasnis: Acta Met. 9(1961)165

- (47) M.N. Kabler, M.G. Miller, L.M. Slifkin:
J.Appl.Phys. 34(1963)1953
- (48) R. Reade, D. Martin: J.Appl.Phys. 31(1960)1965
- (49) P. Süptitz: Ann.Phys. 9(1962)133
- (50) M. Wentz: Diplomarbeit, Frankfurt a.M. 1970
- (51) F. Moser, F. Urbach: Phys.Rev. 102(1956)1519
- (52) K. Meinig, J. Metz, J. Teltow:
phys.stat.sol. 2(1962)1556
- (53) W.S. Rodney, R.J. Spindler:
J.Res.Nat.Bur.Standards A 53(1954)185
- (54) H. Schröter: Z.Physik 67(1931)24
- (55) L.W. Tilton, E.K. Plyler, R.E. Stephens:
J.Opt.Soc.Amer. 40(1950)540
- (56) C.B. Childs, in "ACCG Conference on Crystal Growth 1969"
(Nat. Bureau of Standards, Gaithersburg, Md.)
- (57) H. Fesefeld: Z.Physik 64(1930)741
- (58) Gmelin-Institut (Hrsg.): Gmelins Handbuch der anorga-
nischen Chemie; Cadmium Erg.-Bd., System-Nr.33
(Verlag Chemie GmbH, Weinheim, 1959), S.488
- (59) ASTM-Karteikarte 9-401
- (60) ASTM-Karteikarte 1-0161 Minor Correction
- (61) ASTM-Karteikarte 5-0674 Minor Correction
- (62) S. Suzuki: Kolloid-Z. 143(1955)103
- (63) S. Suzuki: Z.anorg.allg.Chem. 286(1956)288
- (64) S. Suzuki: Nature 183(1959)1755
- (65) G. Haase, F. Granzer, F. Zörgiebel:
Z.angew.Phys. 18(1964)120
- (66) F. Zörgiebel: Diplomarbeit, Frankfurt a.M. 1965
- (67) F. Granzer, G. Haase, F. Zörgiebel:
J.Appl.Phys. 37(1966)457
- (68) F. Zörgiebel, F. Granzer, G. Haase:
LEITZ-Mitteil. Wiss. u. Techn. 4(1969)200
- (69) F. Zörgiebel, G. Haase: Z.angew.Phys. 28(1970)215
- (70) ASTM-Karteikarte 6-0480
- (71) ASTM-Karteikarte 4-0783 Major Correction
- (72) K. Suzuki: J.Phys.Soc.Japan 16(1961)67
- (73) C. Wagner, P. Hantelmann: J.Phys.Chem. 54(1950)426
- (74) E.K. Hyde, I. Perlman, G.T. Seaborg:
The Nuclear Properties of the Heavy Elements,
Volume II. (Prentice-Hall Inc., Englewood Clifles,
N.J., 1964)

- (75) H.W. Schmitt, W.E. Kiker, C.W. Williams:
Phys.Rev. 137 B (1965)237
- (76) U. Höppner, E. Konecny, G. Fiedler:
Nucl.Instr.Meth. 74(1969)285
- (77) G. Henig: Diplomarbeit und Bericht IKF-IB 32,
Frankfurt a.M. 1968
- (78) G. Henig, G. Haase, E. Schopper, J.-U. Schott,
F. Zörgiebel: Nucl.Instr.Meth. (erscheint demnächst)
- (79) J.-U. Schott, G. Haase, G. Henig, E. Schopper,
F. Zörgiebel: Nucl.Instr.Meth. (erscheint demnächst)
- (80) E. Schopper, G. Haase, G. Henig, J.-U. Schott,
F. Zörgiebel: J.Appl.Phys. (erscheint in Kürze)
- (81) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker:
J.Appl.Phys. 36(1965)3645
- (82) E.J. Kobetich, R. Katz: Phys.Rev. 170(1968)391
- (83) J.H. Butts, R. Katz: Rad.Res. 30(1967)855
- (84) R. Katz, E.J. Kobetich: Phys.Rev. 170(1968)397
- (85) R. Katz, E.J. Kobetich: Phys.Rev. 170(1968)401
- (86) R. Katz, J.J. Butts: Phys.Rev. 137B(1965)198
- (87) E.J. Kobetich, R. Katz: Phys.Rev. 170(1968)405
- (88) R. Katz, E.J. Kobetich: Phys.Rev. 186(1969)344
- (89) R. Katz, E.J. Kobetich: Nucl.Instr.Meth. 79(1970)320
- (90) J. Vallin: Arkiv Fys. 34(1967)367
- (91) R.M. Sternheimer: Phys.Rev. 88(1952)851
- (92) N.V. Skirda: Sov.J.Nucl.Phys. 11(1970)106
- (93) J.E. Turner: NAS-NRC-Publ. 1133(1964)99
- (94) M.J. Berger, S.M. Seltzer: NAS-NRC-Publ. 1133(1964)205
- (95) M.S. Livingston, H.A. Bethe: Rev.Mod.Phys. 9(1937)245
- (96) E.J. Kobetich, R. Katz: Nucl.Instr.Meth. 71(1969)226
- (97) K.H. Weber: Nucl.Instr.Meth. 25(1964)261
- (98) G. Depouy, F. Perrier, P. Verdier, F. Arnal:
C.R. Acad.Sci.(Paris) 258(1964)3655; 260(1965)6055
- (99) N.F. Mott: Proc.Roy.Soc. A 124(1929)425
- (100) H.L. Bradt, B. Peters: Phys.Rev. 74(1948)1828
- (101) H.H. Heckmann, B.L. Perkins, W.G. Simon, F.M. Smith,
W.H. Barkas: Phys.Rev. 117(1960)544
- (102) M.E. Rudd, C.A. Sauter, L. Bailey: Phys.Rev. 151(1966)20
- (103) W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel:
Nuklidkarte (Gersbach u. Sohn, München, 1968)
- (104) H. Gunther, G. Siegert, R. Gebert, D. Kerr, E. Konecny:
Z.Naturforsch. 22a(1967)1808

- (105) E. Konecny, G. Siebert: Z.Naturforsch. 21a(1966)192
- (106) P. Müller: phys.stat.sol. 12(1965)775
- (107) H.C. Abbink, D.S. Martin: J.Phys.Chem.Sol. 27(1966)205
- (108) R.W. Gurney, N.F. Mott: Proc.Roy.Soc. A 164(1938)151
- (109) J.W. Mitchell: J.Phot.Sci. 6(1958)57; 9(1961)328
- (110) J. Malinowski: J.Phot.Sci. 16(1968)57
- (111) M. Georgiev: Z.wiss.Phot. 63(1969)9
- (112) R. Matejec: Photogr.Korresp. 102(1966)138
- (113) Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen,
I.Band 4.Teil (Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-
Heidelberg, 1955)
- (114) F. Seitz: Revs.Mod.Phys. 26(1954)7
- (115) F. Seitz: Phys.Rev. 83(1951)134
- (116) F. Zörgiebel: Bericht IKF-28 (Institut für Kernphysik
der Universität Frankfurt a.M., 1971)

Die vorliegende Dissertation entstand im Rahmen des vom Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft geförderten Forschungsvorhabens "Silberhalogenid-Kristalle als Teilchenspurdetektoren" (St.Sch.504), das von Herrn Prof. Dr. E. Schopper (Gruppe Kernphysik) und Herrn Prof. Dr. G. Haase (Gruppe Festkörperphysik) gemeinsam geleitet wird.

Die Arbeit wurde in der Abteilung für wissenschaftliche Photographie des Instituts für angewandte Physik der Universität Frankfurt a.M. angefertigt.

Meinem verehrten Lehrer und Doktorvater, Herrn Prof. Dr. G. Haase, seinerzeit Leiter der Abt. für wissenschaftliche Photographie, danke ich recht herzlich für die Anregung zur vorliegenden Dissertation, sowie für die laufende Betreuung bei der Durchführung und für zahlreiche Hinweise und Ratschläge, die zum Gelingen der Arbeit ganz wesentlich beitrugen.

Besonderer Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. E. Schopper, Direktor des Instituts für Kernphysik, für viele fruchtbare Anregungen und Diskussionen und die stete Förderung meiner Arbeit.

Der guten Zusammenarbeit mit Dipl.-Phys. J.-U. Schott und Dipl.-Phys. G. Henig vom Institut für Kernphysik verdanke ich die Bestrahlung und Dekoration der meisten Kristalle sowie die praktische Prüfung der Kristalle auf ihre Detektoreigenschaften. In der Anfangsphase des Vorhabens war Dr. K. Breuer beteiligt. Von Herrn Schott habe ich die Abb. 47 und 48 übernommen, die Abb. 49 und 50 sind das Ergebnis gemeinsamer Untersuchungen.

Herrn Priv.-Doz. Dr. Konecny und seine Arbeitsgruppe ermöglichte am Massenseparator der Reaktorstation Garching der TU München die Bestrahlung von AgCl-Proben. Für den gleichen Zweck stellten die Herren Dipl.-Phys. W. Krätschmer und T. Plieninger vom Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg einen Teil ihrer Bestrahlzeit am Emperor-Beschleuniger zur Verfügung. Allen diesen Herren sei für ihr Entgegenkommen herzlich gedankt.

Herrn Stud.-Assess. W. Saul verdanke ich den Aufbau der Grundkonzeption einer Zonenreinigungsanlage. Für die Mithilfe beim Kristallzüchten während der Spätphase dieser Arbeit danke ich Herrn Dipl.-Phys. M. Schäfer und Herrn Th. Wendnagel.

Für zahlreiche Ratschläge und Diskussionen über Details der vorliegenden Abhandlung bin ich Herrn Prof. Dr. F. Granzer zu Dank verpflichtet.

LEBENS LAUF

Am 4. Dezember 1930 wurde ich als Sohn des Chauffeurs Georg Zörgiebel und dessen Ehefrau Marie, geb. Jost, in Fränkisch Crumbach (Odenwald) geboren. Nach 4 1/2 Jahren Volksschule besuchte ich 3 1/2 Jahre das Gymnasium in Groß Bieberau (Odenwald), das ich im Frühjahr 1945 wegen Schließung verlassen mußte.

Im November 1945 trat ich bei der Firma Beganie, Nieder Ramstadt bei Darmstadt, eine 3 1/2-jährige Werkzeugmacherlehre an, die ich Ostern 1949 mit der Facharbeiterprüfung abschloß. In einem Vor- und fünf ordentlichen Semestern studierte ich danach an der Städtischen Ingenieurschule Darmstadt, wo ich 1952 die staatliche Ingenieurprüfung in der Abt. Maschinenbau ablegte.

Es folgte eine Ausbildung im gehobenen posttechnischen Dienst in Frankfurt a.M., Wiesbaden und Karlsruhe, die ich 1954 mit der Laufbahnprüfung beendete. Als Technischer Postinspektor und Sachbearbeiter für Förderanlagen und Mechanisierung war ich anschließend bis November 1960 bei der Oberpostdirektion Frankfurt a.M. tätig. Außerdienstlich hatte ich in meiner Freizeit für etwa 1 1/2 Jahre das Abendgymnasium für Berufstätige in Offenbach a.M. besucht, wo ich im März 1960 die Reifeprüfung bestand.

Mit dem Sommersemester 1960 begann ich das Studium der Physik an der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität zu Frankfurt a.M. Nach bestandener Diplom-Vorprüfung fertigte ich bei Herrn Prof. Dr. G. Haase, dem damaligen Leiter der Abteilung für wissenschaftliche Photographie am Institut für angewandte Physik, meine Diplom-Arbeit an unter dem Thema "Die Ultramikrotomie als Präparationsmethode für elektronenmikroskopische Untersuchungen an Ionenkristallen und photographischen Schichten". Nach der Diplom-Hauptprüfung (26. Juli 1965) wurde ich im Rahmen eines Detektor-Entwicklungsprojekts, das unter der gemeinsamen Leitung von Prof. Dr. E. Schopper (Gruppe Kernphysik) und Prof. Dr. G. Haase (Gruppe Festkörperphysik) stand, an der Universität Frankfurt a.M. als wissenschaftlicher Mitarbeiter angestellt. Ich hatte die Aufgabe, ein Kristallzüchtlabor und eine Arbeitsgruppe Kristallphysik aufzubauen. Während dieser Zeit entstand auch die vorliegende Dissertation.

Seit Januar 1971 bin ich am Institut für wissenschaftliche Photographie der Technischen Universität München tätig.

Meine akademischen Lehrer waren:

R. Baer, N. Barth, F.-W. Bauer, E. Becker, E.-A. Behrens, H. Böll, H. von Buttler, M. Czerny, H. Dänzer, E. Ernst, K. Fischer, R. Förstner, W. Franz, M. Friedrich, F. Granzer, G. Haase, H. Keller, W. Martienssen, B. Mrowka, A. Münster, H.A. Müser, H. O'Daniel, P. Royen, B. Samson, L. Sauer, C. Schmid, E. Schopper, H. Schramm, H. Schröder, W. Stauder, K.G. Steck, H. Steinwedel, Th. Wieland.

